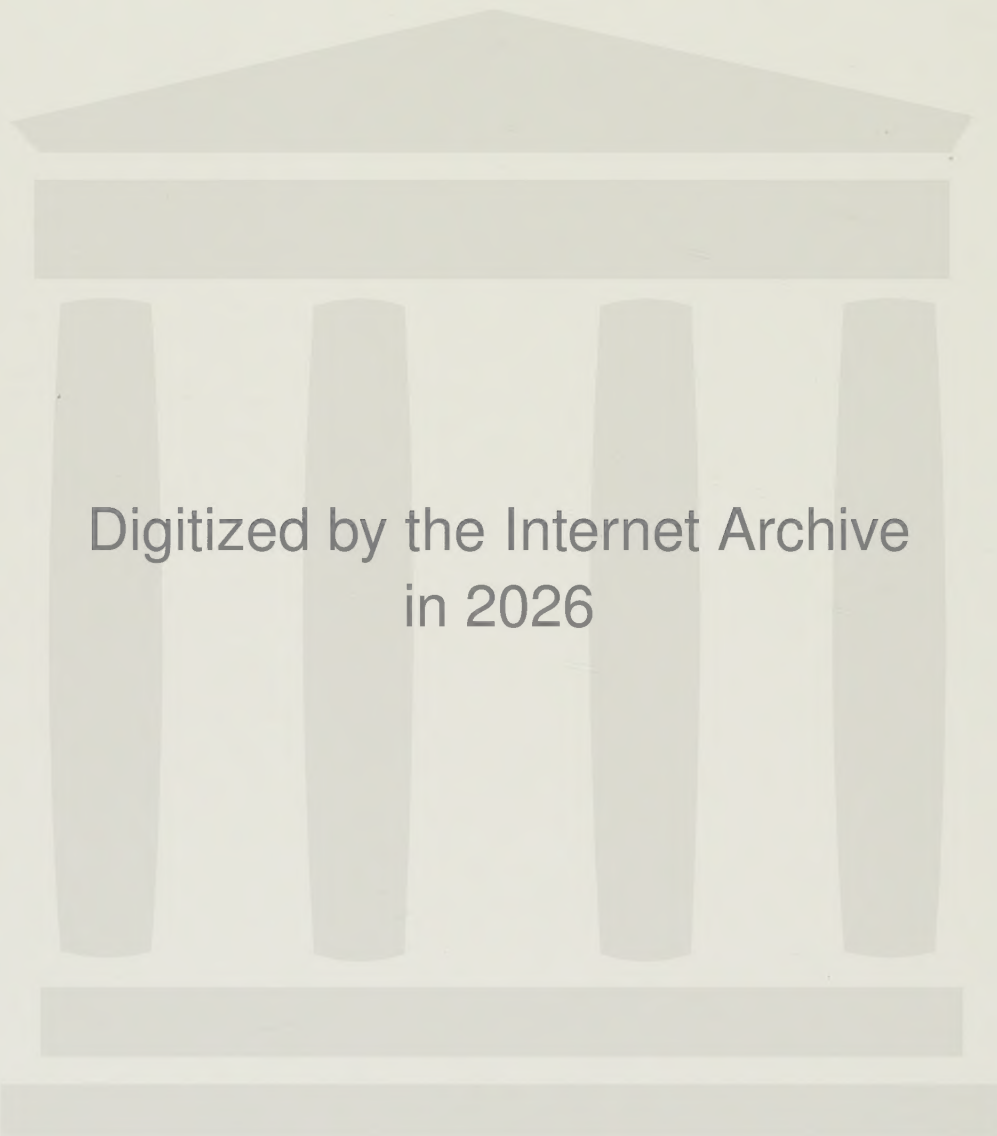


S. Koch

Frankfurt a. M. 1979



Digitized by the Internet Archive
in 2026

https://archive.org/details/IA41550820_0009

ZUR THEORIE DER ELEKTRON-LOCH-TROPFENNUKLEATION
IN STARK ANGEREGTEN HALBLEITERN

Inaugural - Dissertation

zur

Erlangung des Doktorgrades der Naturwissenschaftlichen Fakultät
vorgelegt beim Fachbereich Physik

der

Johann Wolfgang Goethe-Universität
zu Frankfurt am Main

von

Stephan Koch

Frankfurt am Main, 1979

THE LIBRARY OF THE
UNIVERSITY OF LEIDEN

UNIVERSITY OF LEIDEN

1871

THE LIBRARY OF THE UNIVERSITY OF LEIDEN

UNIVERSITY OF LEIDEN

1871

THE LIBRARY OF THE UNIVERSITY OF LEIDEN

UNIVERSITY OF LEIDEN



1871

UNIVERSITY OF LEIDEN

THE LIBRARY OF THE UNIVERSITY OF LEIDEN

Gedruckt mit Genehmigung des Fachbereichs Physik der
Johann Wolfgang Goethe-Universität Frankfurt am Main.

Dekan: Prof.Dr. W. Martienssen

1. Berichterstatter: Prof.Dr. H. Haug

2. Berichterstatter: Prof.Dr. H.G. Schuster

Tag der mündlichen Prüfung: 1. 11. 1979

Inhaltsverzeichnis	Seite
I. Einleitung	1
II. Hydrodynamische Beschreibung der Elektron-Loch-Tropfennukleation	5
1. Kanonische Formulierung der Hydrodynamik	5
a. Aufstellung der reversiblen Bewegungsgleichungen	8
b. Berücksichtigung der dissipativen Prozesse (Langevin-Gleichungen)	11
2. Lineare Analyse des Gleichungssystems	16
a. Linearisierung der Gleichungen	16
b. Modenanalyse der linearen Gleichungen	19
c. Reduktion auf zwei gekoppelte Gleichungen	24
3. Numerische Berechnung des Tropfenprofils	31
III. Verallgemeinerte Ginzburg-Landau-Theorie	42
1. Umformulierung des hydrodynamischen Gleichungssystems	43
2. Eigenwerte und -vektoren des linearen Matrixoperators	46
3. Entwicklung der Lösung des nichtlinearen Gleichungssystems	50
4. Definition und Bestimmungsgleichung des Ordnungsparameters	53
5. Berechnung des verallgemeinerten Ginzburg-Landau-Potentials	58

IV.	Kinetik der Elektron-Loch-Tropfennukleation	67
1.	Erinnerung an die 'klassische' Nukleations- kinetik	68
2.	Nukleationskinetik der Flüssigkeiten endlicher Lebensdauer	75
3.	Zusammenhang zwischen hydrodynamischer und kinetischer Beschreibung der Elektron-Loch- Tropfennukleation	81
4.	Berechnung der Momente der Tropfenverteilungs- funktion	89
5.	Konstruktion der zeitabhängigen Wahrscheinlich- keitsverteilung für Elektron-Loch-Tropfen	107
V.	Offene Probleme bei der Elektron-Loch-Tropfen- nukleation	116
Anhang: A.1	Orthogonalitätsrelation für links- und rechtshändige Eigenvektoren eines nicht selbstadjungierten Matrixoperators	120
A.2	Materialparameter für Germanium	122
A.3	Potential der Sturm-Liouville-Gleichung	123

I Einleitung

Bei sehr tiefen Temperaturen existieren in undotierten Halbleitern praktisch keine freien Ladungsträger. Bestrahlt man einen Kristall jedoch z.B. mit Licht, dessen Energie höher ist als die Energielücke zwischen Leitungsbandminimum und Valenzbandmaximum, so kann man elektronische Anregungen erzeugen. Elektronen werden in das Leitungsband gehoben und lassen im Valenzband Löcher zurück. Diese Leitungsbandelektronen und die Valenzbandlöcher wechselwirken als geladene Teilchen über die Coulomb - Wechselwirkung. Da das Ladungsvorzeichen bei Elektronen und Löchern entgegengesetzt ist, ist die Wechselwirkung anziehend und die Teilchen bilden bei nicht zu hohen Anregungsintensitäten gebundene Elektron - Loch - Paare, die Exzitonen. In der sogenannten Wannier-Näherung (Exzitonen mit großem Radius) besitzen die Exzitonen ein wasserstoffartiges Anregungsspektrum. Lediglich der Bohr'sche Radius und die effektive Masse sind gegenüber dem Wasserstoff modifiziert.

Auch in anderer Hinsicht zeigt das Exzitonensystem gewisse Analogien zum Wasserstoffsystem. Man kann z.B. in einem Halbleiter durch nicht zu starke Bestrahlung (niedrige Anregung) Elektron - Loch - Paare in geringer Konzentration erzeugen. Das System der elektronischen Anregungen hat eine niedrige Dichte und liegt in einer Phase vor, die man in Anlehnung an die bekannten Begriffe als Gasphase bezeichnet. Erhöht man die Anregungsintensität, so werden mehr und mehr Exzitonen erzeugt, bis das System schließlich eine so hohe Dichte erreicht, daß unterhalb der kritischen Temperatur ein Phasenübergang aus der Gasphase in eine Plasmaflüssigkeitsphase

stattfindet. (In der Flüssigkeit existieren keine gebundenen Elektron - Loch - Paare mehr, da die Coulomb - Wechselwirkung wegen der hohen Dichte der elektronischen Anregungen stark abgeschirmt wird.) Bei dem Übergang von der Gas- in die Flüssigkeitsphase kommt es zur Bildung von Elektron - Loch - Tropfen.

Damit besteht eine enge Analogie zwischen dem Phasenübergang im Elektron - Loch - System zu dem bekannten Gas - Flüssigkeits - Übergang z.B. bei Wasser. Der einzige wesentliche Unterschied ist, daß es sich bei dem System der elektronischen Anregungen um ein System handelt, in dem die Teilchen eine endliche Lebensdauer besitzen. Die Elektronen und Löcher können rekombinieren und die dabei freiwerdende Energie auf andere Quasiteilchen übertragen. Man spricht in diesem Sinne von einem offenen System, in dem ständig Teilchen vernichtet und durch äußere Energiezufuhr (Lichteinstrahlung) neu erzeugt werden. Die endliche Lebensdauer modifiziert die Details des Gas - Flüssigkeitsphasenübergangs und die physikalischen Eigenschaften der einzelnen Phasen im Vergleich zu dem klassischen System (unendliche Lebensdauer) erheblich, aber es existieren doch sehr starke prinzipielle Ähnlichkeiten.

Man kann z.B. in beiden Fällen einen Dampfdruck definieren und spricht, je nachdem ob der aktuelle Druck in dem System kleiner, gleich oder größer als der Dampfdruck ist, von einem un-
tersättigten, gesättigten oder übersättigten System. Übersättigter Dampf ist im Prinzip thermodynamisch nicht stabil, aber bei geringer Übersättigung bleibt das System so lange in der Gasphase, daß man von einem metastabilen Zustand sprechen kann. Erst bei höherer Übersättigung findet der Phasenübergang in

die flüssige Phase tatsächlich statt. Dies gilt sowohl für das klassische System, wie auch für das System der elektronischen Anregungen. Neben weiteren Gemeinsamkeiten, auf die im Detail noch näher eingegangen wird, ist die wesentliche Konsequenz der endlichen Lebensdauer im elektronischen System, daß auch ein stark übersättigter Dampf nicht vollständig in die flüssige Phase kondensiert. Übersättigter Wasserdampf wandelt sich z.B. total in Wasser um, es bildet sich ein Tropfen mit 'unendlichem Radius'. Im Elektron - Loch - System jedoch führt die endliche Lebensdauer dazu, daß der Tropfenradius endlich bleibt. Im Gleichgewicht existieren stabile Tropfen mit einem festgelegten Radius, der im wesentlichen durch die Übersättigung, die Systemtemperatur und die Lebensdauer der elektronischen Anregungen bestimmt wird. Dieser stabile Tropfenradius liegt z.B. in Germanium in der Größenordnung von Mikron und die Tropfen sind experimentell gut nachweisbar.

Die theoretische Beschreibung des Phasenübergangs in dem offenen System der elektronischen Anregungen erfolgt als Erweiterung der klassischen Theorie^{1,2,3)} durch zusätzliche Berücksichtigung der relevanten dissipativen Prozesse. (Rekombination von Teilchen, Erzeugung der Teilchen durch äußere Energiezufuhr und andere Dämpfungsprozesse.)

In der vorliegenden Arbeit wird die Elektron - Loch - Tropfen-nukleation zunächst im Rahmen eines hydrodynamischen Modells diskutiert (Abschnitt II). Als wesentliche Information gewinnt man daraus die Größe der stabilen Tropfen im Gleichgewicht und das detaillierte Tropfenprofil⁴⁾. Im Anschluß daran wird der Phasenübergang im Rahmen einer verallgemeinerten Ginzburg -

Landau - Theorie^{5,6)} als Beispiel für einen Phasenübergang erster Ordnung in einem offenen System behandelt (Abschnitt III). Man definiert einen Ordnungsparameter, der ein Maß für die Dichte im Tropfen ist, und erhält als Resultat der Theorie ein verallgemeinertes Ginzburg - Landau - Potential für diesen Ordnungsparameter, das die typischen Eigenschaften eines Phasenübergangs erster Ordnung zeigt.

In Abschnitt IV der vorliegenden Arbeit wird schließlich die Kinetik der Elektron - Loch - Tropfennukleation behandelt. Der Zusammenhang zwischen der hydrodynamischen und der kinetischen Beschreibung wird diskutiert und es wird eine Fokker - Planck - Gleichung für die Wahrscheinlichkeitsverteilung der Elektron - Loch - Tropfen aufgestellt. Ein geschlossenes Gleichungssystem für verschiedene Momente der Verteilung wird hergeleitet und die Momente werden zeitabhängig berechnet. Man erhält so Informationen über die zeitliche Entwicklung des Systems der elektronischen Anregungen während des Phasenübergangs. Die Ergebnisse sind zum Teil direkt mit experimentellen Resultaten vergleichbar⁷⁻¹⁴⁾.

Im Anschluß daran wird die volle Fokker - Planck - Gleichung diskutiert. Aus der Kenntnis der Zeitabhängigkeit der Momente der Verteilung wird als Lösung der Fokker - Planck - Gleichung die Wahrscheinlichkeitsverteilung für Elektron - Loch - Tropfen konstruiert.

II. Hydrodynamische Beschreibung der Elektron-Loch-Tropfen-nukleation

Der Elektron-Loch-Tropfen im umgebenden Exzitonen-Gas ist ein räumlich inhomogenes System. Bereiche hoher Massendichte (ungefähr Flüssigkeitsdichte) im Tropfen sind durch eine Oberfläche von Bereichen niedriger Dichte im Exzitonengas getrennt. Durch die Tropfenoberfläche findet ein Teilchenaustausch statt. Der damit verbundene Teilchenstrom sorgt dafür, daß sich die Masse im System so verteilen kann, daß die Gesamtenergie minimal wird.

Dieses System wird im Rahmen eines hydrodynamischen Modells behandelt^{4,5}). Die Hydrodynamik ist eine Kontinuumsapproximation, da das Tropfen-Gas-System als Flüssigkeit mit räumlich variierender Dichte beschrieben wird. Der Zustand der Flüssigkeit wird mit Hilfe von kontinuierlich veränderlichen Funktionen charakterisiert, die im allgemeinen sowohl zeit- als auch ortsabhängig sind. Beispiele für diese Funktionen sind die Dichteverteilung $\rho(\vec{r},t)$ ($\vec{r}$ = Ortsvektor, t = Zeit), die Geschwindigkeitsverteilung $\vec{u}(\vec{r},t)$ und die Temperaturverteilung $T(\vec{r},t)$ in der Flüssigkeit. Mittels dieser drei Felder ist der Bewegungszustand jeder Flüssigkeit vollständig beschreibbar. (Vgl. z.B. Ref. 15.)

II.1 Kanonische Formulierung der Hydrodynamik

Für das Dichtefeld $\rho(\vec{r},t)$ (ρ = Massendichte), das Geschwindigkeitsfeld $\vec{u}(\vec{r},t)$ und das Temperaturfeld $T(\vec{r},t)$ werden Bewegungsgleichungen hergeleitet. Diese bestehen jeweils aus

zwei Anteilen, die einerseits die reversiblen Prozesse beschreiben und andererseits die dissipativen Prozesse erfassen. Die Berücksichtigung der dissipativen Prozesse (Rekombination von Teilchen, Erzeugung von Teilchen und Dämpfung durch Streuprozesse) stellt eine Erweiterung der Hydrodynamik auf ein offenes System dar und ist unumgänglich für die Behandlung des Elektron-Loch-Systems. Außerdem muß man auch insoweit über die übliche Hydrodynamik hinausgehen, da höhere Ableitungen der Dichte mitgenommen werden müssen, um die Oberfläche der flüssigen Phase beschreiben zu können.

Zunächst sollen im folgenden die reversiblen Bewegungsgleichungen aufgestellt werden¹⁶⁻²⁰), die dissipativen Anteile werden später hinzugefügt. (Aus den reversiblen Gleichungen werden dann irreversible Langevin-Gleichungen (vgl. z.B. Ref. 6)).

Man beginnt mit einem Ansatz für die Gesamtenergie E des Systems. Die Gesamtenergie setzt sich zusammen aus der kinetischen Energie, der inneren Energie und der Oberflächenenergie.

$$E = \int d^3r \left[\frac{1}{2} \mathcal{S} \vec{u}^2 + \mathcal{S} \mathcal{E} + \frac{1}{2} H (\vec{\nabla} \mathcal{S})^2 \right] \quad \text{II.1}$$

Der erste Term $\frac{1}{2} \mathcal{S} \vec{u}^2$ ist die kinetische Energiedichte der Teilchen ($\mathcal{S}$ = Massendichtefeld, $\vec{u}$ = Geschwindigkeitsfeld). Der zweite Term ist die Dichte der inneren Energie ($\mathcal{E}$ = innere Energie pro Teilchen). Der dritte Term schließlich ist der Gradientenansatz für die Oberflächenenergie. Er ist immer positiv, da die Anwesenheit einer Oberfläche die Gesamtenergie des Systems erhöht. Durch den kontinuierlichen Gradientenan-

satz ist es möglich, Bildung und Struktur einer Oberfläche einheitlich zu beschreiben. Mit der (z.B. in der Thermodynamik) phänomenologisch eingeführten Oberflächenspannung $\mathcal{G}$ besteht der Zusammenhang

$$\mathcal{G} = \int_0^\infty dr \, H \left(\frac{\partial \mathcal{S}}{\partial r} \right)^2. \quad \text{II.2}$$

Gleichung (II.2) gilt im Fall von Radialsymmetrie, wie das z.B. bei einem kugelförmigen Tropfen der Fall ist.

Beschränkt man die weitere Behandlung auf wirbelfreie Strömungen mit

$$\vec{\nabla} \times \vec{u} = 0$$

$$\left(\vec{\nabla} = \vec{e}_1 \partial_1 + \vec{e}_2 \partial_2 + \vec{e}_3 \partial_3, \quad \partial_i = \frac{\partial}{\partial r_i} \right),$$

so kann man ein skalares Geschwindigkeitspotential φ definieren, für das gilt

$$\vec{u} = -\vec{\nabla} \varphi. \quad \text{II.3}$$

Ausgedrückt durch dieses Geschwindigkeitspotential lautet die Gesamtenergie E

$$E = \int d^3r \left[\frac{1}{2} \rho (\vec{\nabla} \varphi)^2 + \rho \varepsilon + \frac{1}{2} H (\vec{\nabla} \mathcal{S})^2 \right]. \quad \text{II.4}$$

Im Rahmen einer kanonischen Formulierung der Hydrodynamik kann man eine Lagrangefunktion L konstruieren, die zu der Gleichung II.4 als Hamiltonfunktion führt.

Für die Lagrangedichte macht man den Ansatz

$$\mathcal{L} = \int \left[\partial_t \varphi - \frac{1}{2} (\vec{\nabla} \varphi)^2 - \varepsilon \right] - \frac{1}{2} \hbar (\vec{\nabla} \mathcal{S})^2, \quad \text{II.5}$$

die Lagrangefunktion erhält man durch die Integration

$$L = \int d^3r \mathcal{L}.$$

II.1.a Aufstellung der reversiblen Bewegungsgleichungen

Die reversiblen Bewegungsgleichungen erhält man (im Rahmen einer kanonischen Formulierung) z.B. als Lagrangegleichungen aus Gl. II.5. Diese sind

$$\frac{\delta L}{\delta \varphi} - \partial_t \frac{\delta L}{\delta (\partial_t \varphi)} - \partial_i \frac{\delta L}{\delta (\partial_i \varphi)} = 0 \quad \text{II.6}$$

und

$$\frac{\delta L}{\delta \mathcal{S}} - \partial_t \frac{\delta L}{\delta (\partial_t \mathcal{S})} - \partial_i \frac{\delta L}{\delta (\partial_i \mathcal{S})} = 0. \quad \text{II.7}$$

Hier (und im weiteren) ist der doppelte Indizes zu summieren:

$$\partial_i \frac{\delta L}{\delta (\partial_i \varphi)} = \sum_i \frac{\partial}{\partial r_i} \left(\frac{\delta L}{\delta \left(\frac{\partial \varphi}{\partial r_i} \right)} \right)$$

und das Symbol $\frac{\delta}{\delta \varphi}$ bedeutet Variationsableitung nach φ

(Vgl. z.B. Ref. 21).

Durchführung der Variation mit der Lagrangefunktion II.5
liefert für II.6

$$\partial_t \rho = \partial_i (\rho \partial_i \varphi) \quad \text{II.8}$$

und für II.7

$$\partial_t \varphi = \frac{1}{2} (\partial_i \varphi)^2 + \varepsilon + \rho \frac{\partial \varepsilon}{\partial \rho} - \rho \partial_i \partial_i \varphi \quad \text{II.9}$$

Gleichung II.8 ist die Kontinuitätsgleichung, die den Erhaltungssatz der Masse in der Hydrodynamik ausdrückt. Die zeitliche Änderung der Massendichte ist durch die Divergenz des Teilchenstroms $\vec{j} = -\rho(\vec{\nabla} \varphi) = \rho \vec{u}$ gegeben:

$$\partial_t \rho = - \partial_i j_i = - \partial_i (\rho u_i), \quad \text{II.10}$$

Gleichung II.9 ist die Eulersche Gleichung, der Ausdruck für die Impulserhaltung in der Hydrodynamik. Man kann sie in eine etwas gebräuchlichere Form bringen, wenn man die thermodynamische Identität

$$\begin{aligned} d\varepsilon &= T ds - p dv = T ds - p d\frac{1}{\rho} \\ &= T ds + \frac{p}{\rho^2} d\rho \end{aligned} \quad \text{II.11}$$

(v = Volumen pro Masse, s = Entropie pro Masse, p = Druck)

anwendet. Läßt man weiterhin einmal den Gradienten auf II.9 wirken, so erhält man

$$\mathcal{S}(\partial_t u_i + u_j \partial_j u_i) = -\partial_i p + \mathcal{H} \mathcal{S} \partial_i \partial_j \partial_j \mathcal{S}. \quad \text{II.12}$$

Die substantielle Ableitung der Geschwindigkeit (linke Seite der Gleichung) ist gegeben durch den Gradienten des Drucks. Wegen der Existenz einer Oberfläche in dem System tritt ein Zusatzterm auf, der wegen der hohen Ableitungen wesentlich nur in der Nähe der Oberfläche beiträgt.

Neben der Kontinuitätsgleichung II.10 und der Eulerschen Gleichung II.12 benötigt man noch eine Gleichung, die der Energieerhaltung in der Hydrodynamik Rechnung trägt.

Diese Gleichung lautet

$$\partial_t \mathcal{H} = -\partial_i \mathcal{S}_i. \quad \text{II.13}$$

Hierbei ist $\mathcal{H}$ die Hamiltondichte (Energiedichte), die auf die übliche Weise aus der Lagrangedichte folgt

$$\mathcal{H} = \mathcal{S} \partial_t \mathcal{P} - \mathcal{L}. \quad \text{II.14}$$

$\mathcal{S}$ ist der Energiestrom, der noch explizit berechnet werden muss. Man setzt II.14 in II.13 ein und führt die Zeitableitung von $\mathcal{L} = \mathcal{L}(\mathcal{P}, \partial_t \mathcal{P}, \vec{\nabla} \mathcal{P}, \mathcal{S}, \vec{\nabla} \mathcal{S}, \Delta \mathcal{S})$ explizit aus. Verwendet man zusätzlich noch die Lagrangegleichungen II.6 und II.7, so erhält man

$$\begin{aligned}
 \partial_t \mathcal{H} &= -\partial_i \left(\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial (\partial_i \rho)} \partial_t \rho \right) - \partial_i \left(\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial (\partial_i s)} \partial_t s \right) \\
 &\quad - \partial_i \left[\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial (\partial_j \partial_j s)} \partial_i \partial_t s - \left(\partial_i \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial (\partial_j \partial_j s)} \right) \partial_t s \right] \\
 &= -\partial_i S_i .
 \end{aligned}
 \tag{II.15}$$

Mit der Lagrangedichte II.5 folgt daraus für den Energiestrom

$$\vec{S} = s \vec{u} \left(\frac{\vec{u}^2}{2} + \varepsilon + \frac{p}{s} - H \Delta s \right) + H (\vec{\nabla} s) [\vec{\nabla} (s \vec{u})] .
 \tag{II.16}$$

Die Gleichungen II.10, II.12 und II.15 bilden zusammen mit zwei thermodynamischen Zustandsgleichungen für die innere Energie und den Druck als Funktionen der Massendichte und der Temperatur ein abgeschlossenes Gleichungssystem, das die Eigenschaften einer idealen Flüssigkeit vollständig beschreibt. Um diese Gleichungen auch für reale Flüssigkeiten verwenden zu können, muß man neben den bisher behandelten reversiblen Prozessen auch noch dissipative Prozesse berücksichtigen, die in einer realen im Gegensatz zur idealen Flüssigkeit auftreten.

II.1.b Berücksichtigung der dissipativen Prozesse (Langevin-Gleichungen)

In der Elektron-Loch-Flüssigkeit müssen als dissipative Prozesse im wesentlichen die Rekombination der Teilchen, das Erzeugen von Teilchen und Streuprozesse von Teilchen berück-

sichtigt werden. Dadurch treten Zusatzterme in den reversiblen Gleichungen auf. Allgemein läßt sich die zeitliche Änderung der Dichte und der Geschwindigkeit schreiben als

$$\partial_t \mathcal{S} = \partial_t \mathcal{S} \Big|_r + \partial_t \mathcal{S} \Big|_d \quad \text{II.17}$$

und

$$\partial_t \vec{u} = \partial_t \vec{u} \Big|_r + \partial_t \vec{u} \Big|_d, \quad \text{II.18}$$

wobei der Index r reversibel und d dissipativ kennzeichnen soll.

Der Term $\partial_t \mathcal{S} \Big|_d$ wird angesetzt als⁴⁾

$$\partial_t \mathcal{S} \Big|_d = \frac{\bar{\mathcal{S}} - \mathcal{S}}{\tau} \quad \text{II.19}$$

Hierbei ist $\mathcal{S}/\tau$ die Verlustrate durch Rekombination der Teilchen. τ ist die mittlere Lebensdauer. $\bar{\mathcal{S}}/\tau$ ist die Rate, mit der Teilchen durch äußere Anregung (Lichteinstrahlung) erzeugt werden. Man nennt $\bar{\mathcal{S}}/\tau$ die Pumprate. Die Eulersche Gleichung mit Dämpfungstermen nennt man Navier-Stokes-Gleichung.

In der Navier-Stokes-Gleichung bedeutet

$$\partial_t \vec{u} \Big|_d = -\beta \vec{u}. \quad \text{II.20}$$

Die Dämpfungskonstante β berücksichtigt die Streuung der elektronischen Anregungen an Phononen und an Gitterunregel-

mäßigkeiten. In der Erhaltungsgleichung für die Energie schließlich wird ein Wärmestrom

$$-\vec{\nabla} \cdot \vec{q} = \kappa \Delta T \quad \text{II.21}$$

aufgrund einer endlichen Wärmeleitfähigkeit κ berücksichtigt. Darüberhinaus darf man hier nicht die Rückkopplung der dissipativen Terme aus Kontinuitäts- und Navier-Stokes-Gleichungen in die Energiegleichung außer Acht lassen. Es gilt nämlich

$$\partial_t \mathcal{H} = -\partial_i S_i + \left. \frac{\partial \mathcal{H}}{\partial s} \partial_t s \right|_d + \left. \frac{\partial \mathcal{H}}{\partial (\partial_i s)} \partial_i \partial_t s \right|_d + \dots - \kappa \Delta T, \quad \text{II.22}$$

da in $\partial_i S_i$ nur die reversiblen Prozesse enthalten sind. Andererseits folgt (wegen $E = \int d^3r \mathcal{H}$) aus Gleichung II.4

$$\partial_t \mathcal{H} = \partial_t \left[s \left(\frac{1}{2} u_i^2 + \varepsilon \right) + \frac{1}{2} \mu (\partial_i s)^2 \right], \quad \text{II.23}$$

wobei $\partial_t = \left. \partial_t \right|_r + \left. \partial_t \right|_d$ ist.

Führt man die Zeitableitungen in II.23 aus und vergleicht das Ergebnis mit der rechten Seite von II.22, so erhält man daraus die Bilanzgleichung der inneren Energie:

$$s(\partial_t \varepsilon + u_i \partial_i \varepsilon) = -p \partial_i u_i + \kappa \partial_i \partial_i T. \quad \text{II.24}$$

Aus dieser Herleitung erkennt man, daß die dissipativen Terme aus Kontinuitäts- und Navier-Stokes-Gleichung zwar in die

Gleichung für die Gesamtenergieerhaltung rückkoppeln, nicht aber in die Erhaltungsgleichung für die innere Energie.

Um die Bewegungsgleichungen zu vollen Langevingleichungen zu erweitern, müssen noch die zu den Dämpfungen gehörenden statistischen Fluktuationen F berücksichtigt werden. Physikalisch gesehen stellen die Fluktuationen die Ursache für die Dämpfungen dar. Der Mittelwert der Fluktuationen verschwindet, so daß in den mittleren Gleichungen nur die Dämpfungsterme auftreten.

Das vollständige Gleichungssystem lautet:

Kontinuitätsgleichung

$$\partial_t \rho = -\partial_i (\rho u_i) + \frac{\bar{\rho} - \rho}{\tau} + F_\rho \quad \text{II.25}$$

Navier-Stokes-Gleichung

$$\rho (\partial_t u_i + u_j \partial_j u_i) = -\partial_i p + \eta \partial_i \partial_j \partial_j \rho - \beta \rho u_i + F_{\rho, i} \quad \text{II.26}$$

Erhaltungsgleichung der inneren Energie

$$\rho (\partial_t \varepsilon + u_i \partial_i \varepsilon) = -p \partial_i u_i + \kappa \partial_i \partial_i T - \partial_i F_{\kappa, i} \quad \text{II.27}$$

Die zweiten Momente der Fluktuationen sind gegeben durch^{15,24,40,47)}

$$\langle F_\rho(r, t) F_\rho(r', t') \rangle = \frac{m}{\tau} (\bar{\rho} + \rho) \delta(r - r') \delta(t - t'),$$

$$\langle \bar{F}_{p,i}(r,t) \bar{F}_{p,i}(r',t') \rangle = 2kT S \beta \delta(r-r') \delta(t-t') \delta_{ij}$$

und

$$\langle \bar{F}_{e,i}(r,t) \bar{F}_{e,j}(r',t') \rangle = 2ekT^2 \delta(r-r') \delta(t-t') \delta_{ij}.$$

Die drei Gleichungen II.25 - II.27 bilden im wesentlichen die Grundlage der weiteren hydrodynamischen Analyse. Wie bereits erwähnt, ist das Gleichungssystem geschlossen, wenn man noch zwei thermodynamische Zustandsgleichungen für ϵ und ρ kennt. Realistische Zustandsgleichungen für das Elektron-Loch-System sind bis heute nur im Rahmen gewisser Näherungen und auch da nicht in analytischer Form bekannt. (Vgl. z.B. Ref. 22 und 23)

Deshalb werden für die weiteren Rechnungen Van der Waals-artige Modellzustandsgleichungen gewählt⁴⁾. Es wird kein Anspruch darauf erhoben, damit die realen Verhältnisse im System der elektronischen Anregungen gut approximieren zu können. Wichtig ist lediglich, daß unterhalb einer kritischen Temperatur ein Bereich auftritt, in dem das System mechanisch instabil wird. In diesem Bereich existieren Elektron-Loch-Tropfen. Ein solcher Instabilitätsbereich ist bei einem modifizierten Van der Waals-Modell vorhanden. (Für die Details der Zustandsgleichung vgl. Kapitel II.2.c).

II.2 Lineare Analyse des Gleichungssystems

Um einen ersten Einblick in die physikalischen Konsequenzen der hydrodynamischen Approximation des Elektron-Loch-Systems zu erhalten, macht man zunächst eine lineare Analyse der mittleren Gleichungen II.25 - II.27 (vgl. Ref. 24). Die lineare Analyse liefert sinnvolle Informationen, solange sich die Flüssigkeit in der Nähe des Gleichgewichts befindet. Darüberhinaus ist es in gewissen Parameterbereichen (in der Nähe des kritischen Punktes, wie es sich herausstellen wird) möglich, die Lösungen des vollen Gleichungssystems nach den Lösungen des linearisierten Problems zu entwickeln (vgl. Abschnitt III der vorliegenden Arbeit).

II.2.a Linearisierung der Gleichungen

Das Gleichungssystem II.25 - II.27 wird linearisiert, indem man die Variablen um ihren Wert im Gleichgewicht entwickelt und in den Abweichungen nur lineare Terme berücksichtigt.

$$\vartheta = \bar{\vartheta} + \delta\vartheta, \quad u_i = \bar{u}_i + \delta u_i, \quad T = \bar{T} + \delta T \text{ etc.}$$

II.28

Die Größen mit Querstrich bedeuten dabei die Werte der entsprechenden Größen im Gleichgewicht. Insbesondere ist $\bar{u}_i = 0$, da die Gesamtflüssigkeit im Gleichgewicht ruht.

Einsetzen von II.28 in die gemittelte Kontinuitätsgleichung II.25 liefert die linearisierte Gleichung

$$\partial_t \delta \vartheta = \bar{\vartheta} \partial_i \delta u_i - \frac{\delta \vartheta}{\tau} \quad \text{II.29}$$

Bei der Linearisierung der Navier-Stokes-Gleichung muß unter anderem auch $\partial_i p$ linearisiert werden. Die Zustandsgleichung liefert $p = p(S, T)$. Damit gilt

$$\begin{aligned} \partial_i p &= \left(\frac{\partial p}{\partial S} \right)_T \partial_i S + \left(\frac{\partial p}{\partial T} \right)_S \partial_i T \\ &= D \partial_i S + B \partial_i T \end{aligned} \quad \text{II.30}$$

wobei

$$D = \left(\frac{\partial p}{\partial S} \right)_T \quad \text{und} \quad B = \left(\frac{\partial p}{\partial T} \right)_S$$

Linearisieren der Gleichung II.30 führt auf

$$\partial_i \delta p = \bar{D} \partial_i \delta S + \bar{B} \partial_i \delta T$$

Damit erhält man die linearisierte, gemittelte Navier-Stokes-Gleichung als

$$\begin{aligned} \bar{\vartheta} \partial_t \delta u_i &= -\bar{D} \partial_i \delta S - \bar{B} \partial_i \delta T + \bar{\vartheta} H \partial_i \partial_j \partial_j \delta S - \\ &\quad - \beta \bar{\vartheta} \partial_i \delta u_i \end{aligned} \quad \text{II.31}$$

Entsprechend folgt für die Erhaltungsgleichung der inneren Energie in linearer Näherung:

$$\bar{\vartheta} \partial_t \delta \varepsilon = -\bar{p} \partial_i \delta u_i + \kappa \partial_i \partial_i \delta T \quad \text{II.32}$$

Diese Gleichung kann man in eine Gleichung für die Temperatur umschreiben. Aus der Zustandsgleichung $\varepsilon = \varepsilon(S, T)$ folgt

$$\partial_t \varepsilon = \left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial S} \right)_T \partial_t S + \left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial T} \right)_S \partial_t T, \quad \text{II.33}$$

Nun ist wegen II.11

$$S^2 \left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial S} \right)_T = S^2 T \left(\frac{\partial s}{\partial S} \right)_T + p \quad \text{II.34}$$

Da $S = 1/V$ gilt $S^2 \left(\frac{\partial s}{\partial S} \right)_T = - \left(\frac{\partial s}{\partial V} \right)_T$.

Unter Verwendung einer Maxwell-Relation²⁵⁾ erhält man

$$\left(\frac{\partial s}{\partial V} \right)_T = \left(\frac{\partial p}{\partial T} \right)_V = \left(\frac{\partial p}{\partial T} \right)_S = B$$

(lt. Definition in II.30).

Nennt man weiterhin

$$\left(\frac{\partial \varepsilon}{\partial T} \right)_S = C, \quad \text{II.35}$$

so folgt aus II.33

$$\partial_t \varepsilon = \left(\frac{p}{S^2} - \frac{T}{S^2} B \right) \partial_t S + C \partial_t T \quad \text{II.36}$$

Linearisieren dieser Gleichung unter Verwendung von II.29

liefert

$$\partial_t \delta \varepsilon = - \frac{1}{\bar{\varepsilon}^2} (\bar{p} - \bar{T} \bar{B}) (\bar{\varepsilon} \partial_i \delta u_i + \frac{\delta \mathcal{S}}{\tau}) + \bar{C} \partial_t \delta T. \quad \text{II.37}$$

Setzt man dies schließlich in Gleichung II.32 ein, dann erhält man die gesuchte Gleichung für die Abweichung der Temperatur vom Gleichgewicht

$$\bar{\varepsilon} \bar{C} \partial_t \delta T = - \bar{T} \bar{B} \partial_i \delta u_i + \mathcal{K} \partial_i \partial_i \delta T - \frac{1}{\bar{\varepsilon}} (\bar{p} - \bar{T} \bar{B}) \frac{\delta \mathcal{S}}{\tau}. \quad \text{II.38}$$

Die Gleichungen II.29, II.31 und II.38 beschreiben die hydrodynamischen Eigenschaften des Elektron-Loch-Systems in linearer Näherung, d.h. in der Nähe des Gleichgewichtszustandes.

II.2.b Modenanalyse der linearen Gleichungen

Um die Stabilität des stationären Zustandes zu untersuchen, macht man eine Modenanalyse²⁶⁾ des linearisierten Gleichungssystems II.29, II.31 und II.38. Bevor dies explizit durchgeführt wird, transformiert man die Gleichungen auf dimensionslose Variablen. Diese werden definiert als

$$\begin{aligned} \tilde{\vec{u}} &= \delta \vec{u} \left(\frac{m}{k T_c} \right)^{1/2}, & \tilde{\mathcal{S}} &= \frac{\delta \mathcal{S}}{\mathcal{S}_c}, & T' &= \frac{\delta T}{T_c}, \\ \tilde{\vec{x}} &= \vec{r} \left(\frac{m}{k T_c \tau^2} \right)^{1/2} \quad \text{und} & \tilde{t} &= \frac{t}{\tau}. \end{aligned} \quad \text{II.39}$$

Hierbei ist m die effektive Exzitonenmasse und T_c und $\mathcal{S}_c$

sind die entsprechenden Größen am kritischen Punkt (k = Boltzmannkonstante). Weiterhin treten als dimensionslose Konstanten auf

$$\tilde{B} = \bar{B} \frac{m}{k s_c}, \quad \tilde{C} = \bar{C} \frac{m}{k}, \quad \tilde{D} = \bar{D} \frac{m}{k T_c}, \quad \text{II.40}$$

$$\tilde{x} = \bar{x} \frac{m^2}{s_c k^2 T_c \tau}, \quad \tilde{f} = \frac{F m^2 s_c}{(k T_c)^2 \tau^2}, \quad \beta' = \beta \cdot \tau.$$

Das dimensionslose linearisierte Gleichungssystem lautet damit

$$\partial_{\tilde{t}} \tilde{S} = -\tilde{S} \partial_i u_i - \tilde{S} \quad \text{II.41}$$

$$\tilde{S} \partial_{\tilde{t}} \tilde{u}_i = -\tilde{D} \partial_i \tilde{S} - \tilde{B} \partial_i T' + \tilde{S} \tilde{f} \partial_i \partial_j \partial_j \tilde{S} - \beta' \tilde{S} u_i \quad \text{II.42}$$

$$\tilde{S} \tilde{C} \partial_{\tilde{t}} T' = -\tilde{T}' \tilde{B} \partial_i \tilde{u}_i + \tilde{x} \partial_i \partial_i T' - \frac{P'}{\tilde{S}} \tilde{S} + \frac{\tilde{T}'}{\tilde{S}} \tilde{B} \tilde{S} \quad \text{II.43}$$

Hierbei bedeutet nun $\partial_i = \frac{\partial}{\partial x_i}$

Im Rahmen einer Modenanalyse macht man für die Variablen $\tilde{S}$, $\tilde{u}$, T' einen Ansatz in der Form von ebenen Wellen

$$\begin{pmatrix} \tilde{S} \\ \tilde{u} \\ T' \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} S_0 \\ \vec{u}_0 \\ T_0 \end{pmatrix} \exp(i \vec{k} \cdot \vec{x} - \omega \tilde{t}) \quad \text{II.44}$$

und berechnet die Eigenfrequenzen $\omega(\vec{k})$ des Systems.

Einsetzen von II.44 in II.41 - II.43 führt auf

$$\omega S_0 = i \bar{\xi} \vec{k} \cdot \vec{u}_0 + S_0 \quad \text{II.45}$$

$$\bar{\xi} \omega \vec{u}_0 = i \vec{k} \tilde{D} S_0 + i \vec{k} \tilde{B} T_0 + i \bar{\xi} \vec{k} k^2 \xi S_0 + \beta' \bar{\xi} \vec{u}_0 \quad \text{II.46}$$

$$\bar{\xi} \tilde{C} \omega T_0 = i \bar{\tau}' \tilde{B} \vec{k} \cdot \vec{u}_0 + \tilde{\kappa} k^2 T_0 + \frac{\bar{P}'}{\bar{\xi}} S_0 - \frac{\bar{\tau}' \tilde{B}}{\bar{\xi}} S_0 \quad \text{II.47}$$

Man erkennt unmittelbar, daß Lösungen in Form von transversalen Wellen ($\vec{k} \perp \vec{u}_0$) nur für den Spezialfall

$$\omega = 1 = \beta' \quad \text{II.48}$$

das Gleichungssystem befriedigen. Da $\beta' = \beta \tau$ folgt aus der Bedingung II.48 $\beta = \tau^{-1}$. Transversale Lösungen sind also immer gedämpft; gegenüber Störungen in dieser Art ist das System stabil.

Setzt man jedoch Lösungen in Form von longitudinalen Wellen an ($\vec{k} \parallel \vec{u}_0$), so kann man Gleichung II.46 skalar mit $\vec{k}$ multiplizieren. Man erhält ein homogenes Gleichungssystem für S_0 , u_0 , T_0 . Die Lösbarkeitsbedingung (Koeffizientendeterminante = 0)

$$\begin{vmatrix} \omega - 1 & -i\bar{\xi}k & 0 \\ ik(\tilde{D} + \bar{\xi}k^2\tilde{f}) & \bar{\xi}(\beta' - \omega) & ik\tilde{B} \\ \frac{\bar{p}' - \bar{T}'\tilde{B}}{\bar{\xi}} & i\bar{T}'\tilde{B}k & (\bar{\omega}k^2 - \bar{\xi}\tilde{C}\omega) \end{vmatrix} = 0 \quad \text{II.49}$$

führt auf eine kubische Bestimmungsgleichung für $\omega = \omega(k)$. Es ist im Prinzip möglich, diese Gleichung analytisch zu behandeln. Wegen der Vielzahl der auftretenden Parameter erweist sich dies jedoch als recht aufwendig, so daß es einfacher erscheint, die Lösungen numerisch zu suchen. In Fig. 1 (Seite 23) sind als Beispiel die numerischen Lösungen für einen ausgewählten Parametersatz dargestellt. Für kleine k -Werte ($k \ll .05$) erkennt man drei rein reelle Lösungen, von denen zwei bei $k = .05$ entarten. An diesem Punkt werden alle Lösungen komplex. Die Imaginärteile von $\omega(k)$ haben eine lineare Dispersion. Sobald $\text{Im}[\omega(k)]$ ungleich Null wird, treten laufende Wellen in dem System auf ($\exp\{-i\text{Im}[\omega(k)] \cdot t\}$).

Die Realteile von ω sind die Dämpfungskonstanten der einzelnen Moden ($\exp\{-\text{Re}[\omega(k)] \cdot t\}$). Positive Realteile bedeuten Abklingen der entsprechenden Mode mit wachsender Zeit. Bei den in Figur 1 gewählten Parametern tritt die Situation auf, daß $\omega_{2/3}(k)$ in einem bestimmten Bereich von k -Werten negativ ist. Die entsprechende Mode ist in diesem Bereich entdämpft, sie wächst mit der Zeit an, das System ist instabil.

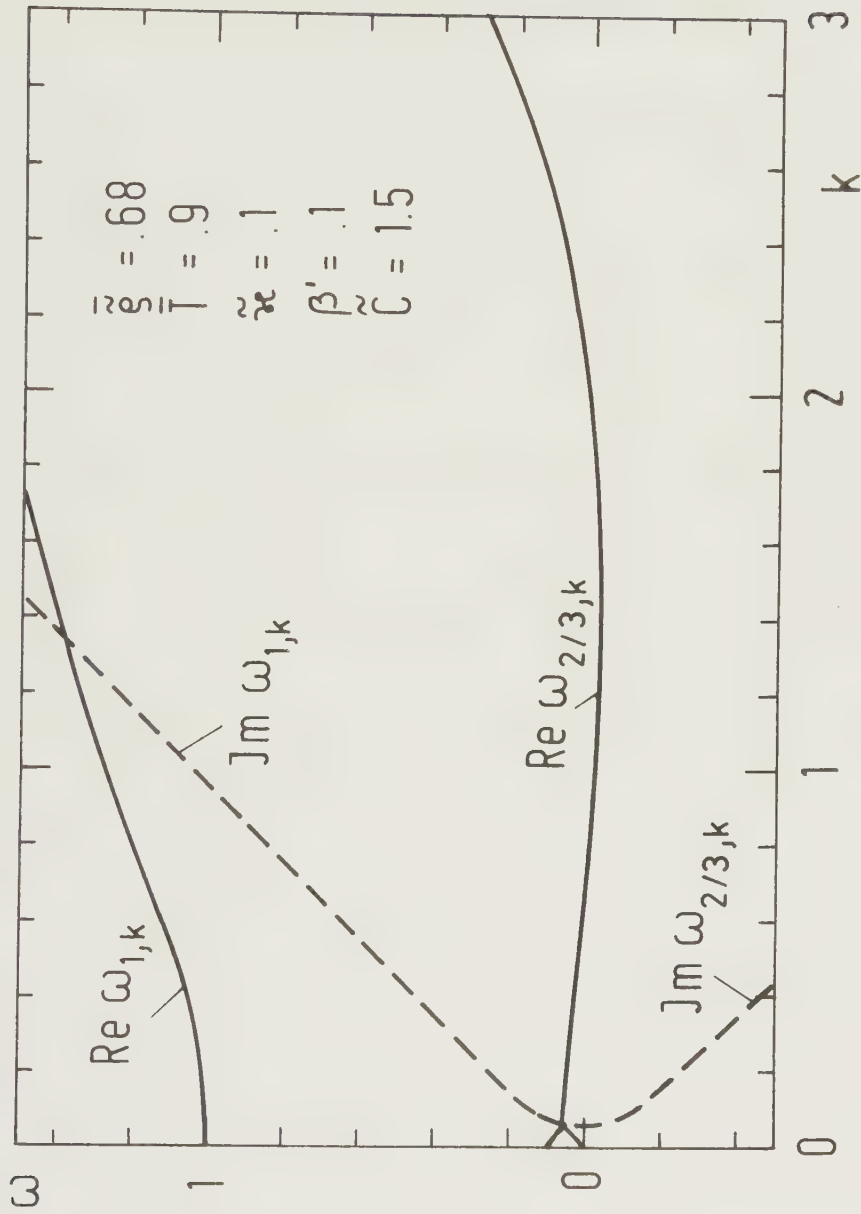


Fig. 1 Eigenwerte $\omega(k)$ des linearisierten hydrodynamischen Gleichungssystems (lt. Gl. II.49).

Diese hydrodynamische Instabilität wird im folgenden noch eingehender untersucht werden.

II.2.c Reduktion auf zwei gekoppelte Gleichungen

Die bereits angesprochene hydrodynamische Instabilität steht in engem Zusammenhang mit der Bildung von Tropfen im Dampf (bzw. mit der Bildung von Gasblasen in der Flüssigkeit), wie noch im einzelnen diskutiert wird. Die wesentlichen Eigenschaften dieser Tropfenbildung im klassischen System²⁰⁾ wie auch im Elektron-Loch-System⁴⁾ kann man bereits erfassen, wenn man sich bei der hydrodynamischen Beschreibung auf isotherme Prozesse beschränkt. Mitberücksichtigung einer variablen Temperatur liefert einen kleinen zusätzlichen Effekt, den sogenannten 'thermischen Fehlanpassungseffekt'²⁰⁾. Er tritt auf, weil der einen Tropfen umgebende Dampf kein idealer Wärmeleiter ist und so die bei der Kondensation auftretende Wärme nicht beliebig schnell abtransportieren kann. Die Konsequenz ist ein Erwärmen des Tropfens und ein Verlangsamen des Wachstums. Dieser Effekt ist jedoch für die Behandlung von stationären Tropfen nicht wesentlich, da im Gleichgewicht ein weitgehender Temperatúrausgleich stattgefunden hat.

Wir beschränken uns deshalb zur Vereinfachung im weiteren auf isotherme Prozesse. Hier ist die Energiegleichung II.27 automatisch erfüllt. Aus der Gibbs-Duhem-Relation

$$-N d\mu + V dp - S dT = 0 \quad \text{II.50}$$

(N = Teilchenzahl, μ = chemisches Potential, V = Volumen, S = Entropie) folgt für isotherme Prozesse $N d\mu = V dp$
bzw. $d\mu = \frac{V}{N} dp = v dp = \frac{m}{s} dp$.

Damit gilt

$$\vec{\nabla} \mu = \frac{m}{s} \vec{\nabla} p \quad \text{II.51}$$

Das reduzierte Gleichungssystem besteht nur noch aus der Kontinuitätsgleichung II.25

$$\partial_t s = -\partial_i (s u_i) + \frac{\bar{s} - s}{\tau} + \mathcal{F}_s \quad \text{II.52}$$

und der Navier-Stokes-Gleichung II.26

$$m \partial_t u_i = -\frac{m}{2} \partial_i (u_j)^2 - \partial_i \mu + K \partial_i \partial_j \partial_j n - m \beta u_i + \tilde{\mathcal{F}}_{\beta,i} \quad \text{II.53}$$

wobei $\tilde{\mathcal{F}}_{\beta,i} = m \mathcal{F}_{\beta,i} / s$, $K = m^2 A$ und $n = s/m$ die Teilchendichte ist.

Um das System abzuschließen, benötigen wir noch eine Zustandsgleichung für das chemische Potential. Dafür wählen wir⁴⁾

$$\mu = -2an + T \ln \frac{n}{1-bn} + \frac{T+nc}{1-bn} - \frac{c}{b} \ln(1-bn) - T \quad \text{II.54}$$

mit $a = (3b - b^2)^{-1}$, $c = a(1-3b)$, $b = .233$.

Dies ist bis auf die Terme $\propto c$ das chemische Potential für das Van der Waals-Gas (vgl. z.B. Ref. 27). Durch Hinzufügen der Terme $\propto c$ wird der funktionale Verlauf von μ nur unwesent-

lich verändert, aber es zeigt sich, daß die spätere numerische Behandlung so erheblich vereinfacht wird.

In Figur 2 (Seite 27) ist das chemische Potential knapp unterhalb und an der kritischen Temperatur gegen die Teilchendichte aufgetragen. Man erkennt für $T < T_c$ den für Van der Waals-Potentiale typischen Instabilitätsbereich.

Gleichung II.52, II.53 und die Zustandsgleichung II.54 werden nun zunächst in linearer Näherung behandelt. Linearisierung analog Abschnitt II.2.a der vorliegenden Arbeit liefert in dimensionslosen Variablen (vgl. II.39, II.40, II.53)

$$\partial_{\tilde{t}} \tilde{n} = -\tilde{n} \partial_i \tilde{u}_i - \tilde{n} \quad \text{II.55}$$

$$\partial_{\tilde{t}} \tilde{u}_i = \xi \partial_i \partial_j \partial_j \tilde{n} - \partial_i \tilde{n} \left(\frac{\partial \tilde{\mu}}{\partial \tilde{n}} \right) - \beta' \tilde{u}_i \quad \text{II.56}$$

(wobei $\tilde{\mu} = \mu/kT_c$). Im Rahmen einer Modenanalyse dieser Gleichungen setzt man wieder ebene Wellen in der Form II.44 an und berechnet die Eigenfrequenzen aus der Lösbarkeitsbedingung des entstehenden linearen Gleichungssystems. Transversale Wellen erweisen sich wiederum als konstant gedämpft. Die Eigenfrequenzen der longitudinalen Wellen $\omega(k)$ kann man explizit leicht angeben, da es sich nur um eine quadratische Gleichung für ω handelt:

$$\omega_{s/u} = \frac{1 + \beta'}{2} \pm \frac{1}{2} \left[(1 - \beta')^2 - 4 \tilde{n} k^2 \left(k^2 \xi + \frac{\partial \tilde{\mu}}{\partial \tilde{n}} \right) \right]^{1/2} \quad \text{II.57}$$

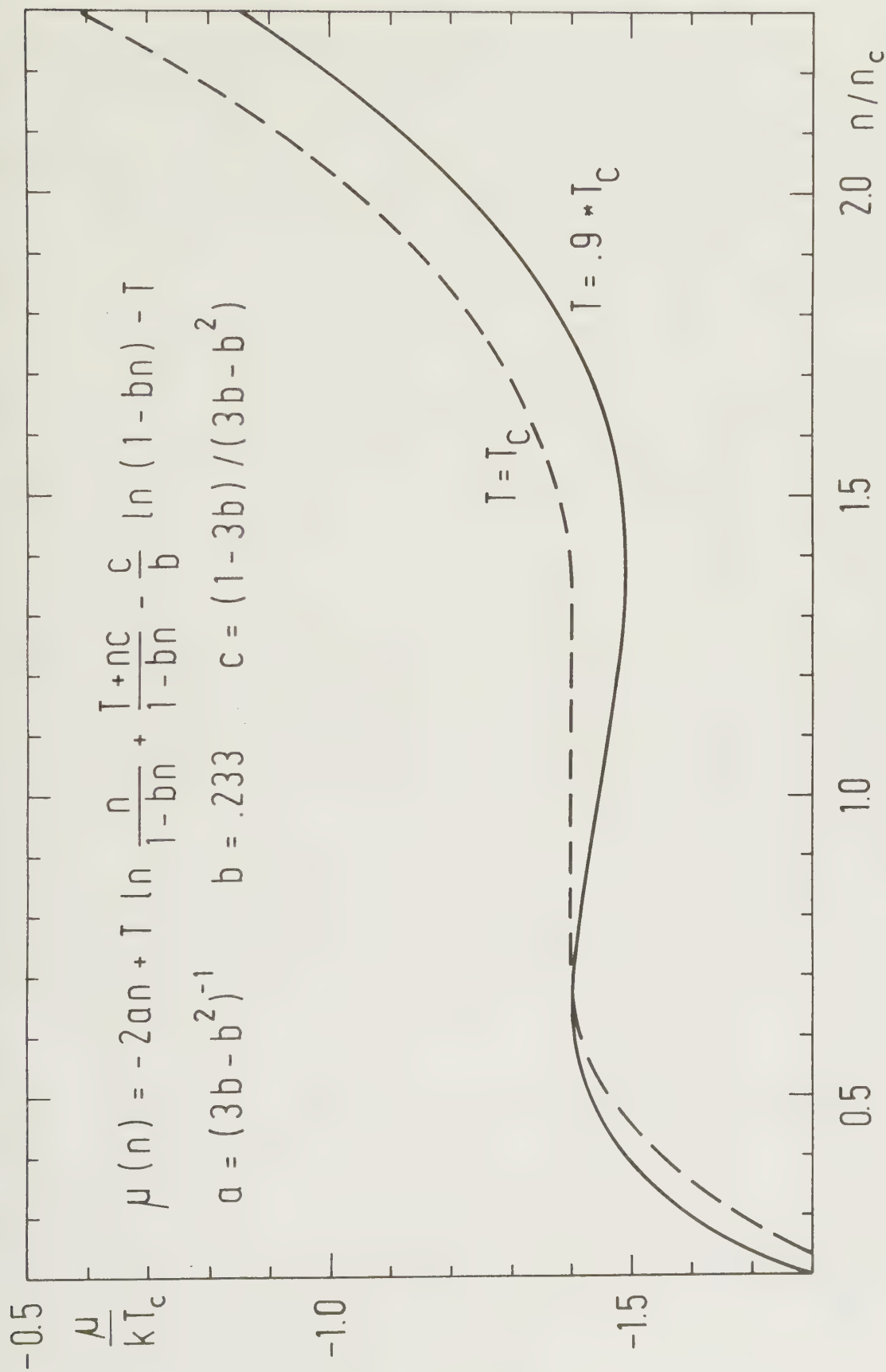


Fig. 2 Chemisches Potential $\mu(n)$ für das Elektron-Loch-System. (Modellpotential lt.Gl.II.54)

In Figur 3 (Seite 29) ist das Spektrum ω als Funktion von k dargestellt. Es besteht aus zwei Ästen (Moden). Wie auch im Falle dreier gekoppelter Gleichungen (Figur 1, S. 23) ist eine Mode stets gedämpft ($\text{Re}[\omega_s(k)] > 0$). Der Eigenwert dieser stabilen Mode wird mit ω_s bezeichnet.

Der Realteil des zweiten Astes in Figur 3 wird in einem Bereich von k -Werten negativ. Diese Mode wird hier entdämpft; man bezeichnet sie als instabile Mode $\omega_u(k)$. Die Analyse zeigt, daß Entdämpfung nur auftritt für

$$-k^2 \xi \approx \frac{\partial \tilde{\mu}}{\partial \tilde{n}}$$

Der Parameter ξ ist zahlenmäßig sehr klein ($10^{-11} - 10^{-15}$ für Si bzw. Ge), so daß die Entdämpfung praktisch bei $\frac{\partial \tilde{\mu}}{\partial \tilde{n}} = 0$ auftritt. Dieser Punkt ist gerade der Instabilitätspunkt des Van der Waals-Potentials (vgl. Fig. 2, S. 27). Man findet in der linearen Analyse der hydrodynamischen Gleichungen also nur den Punkt wieder, an dem das System mechanisch instabil wird und nicht etwa die Maxwellkonstruktion oder etwas Vergleichbares.

Dies ist durchaus nicht erstaunlich, da wir eine Störung mit kleiner Amplitude angesetzt haben. Solche Störungen können den Phasenübergang nur am kritischen Punkt verursachen, in anderen Parameterbereichen werden sie ausgedämpft. Die lineare Analyse ist also nur in sehr eingeschränktem Umfang in der Lage, einen Phasenübergang 1. Ordnung (wie er beim Gas-Flüssigkeitsphasenübergang vorliegt) zu beschreiben.

Die Stabilität der einzelnen Phasen wird erheblich überschätzt.

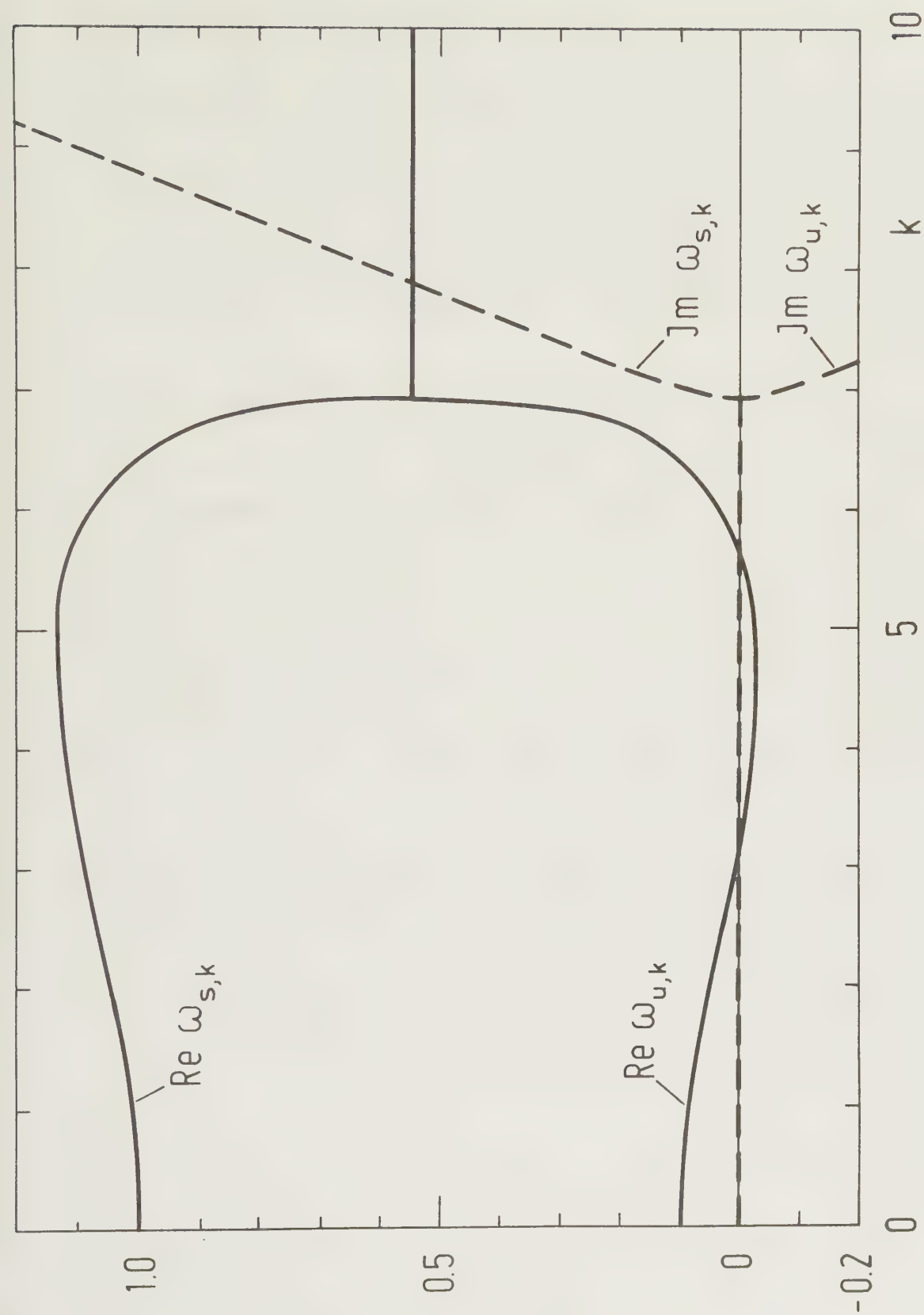


Fig. 3 Eigenwerte $\omega(k)$ der linearisierten Kontinuitäts- und Navier-Stokes-Gleichung (lt. Gl. II.57).

Für eine problemangepaßte Behandlung des Phasenübergangs ist es nötig, die bisher vernachlässigten Nichtlinearitäten in den hydrodynamischen Gleichungen zu berücksichtigen. Erst Fluktuationen mit großer Amplitude (makroskopische Fluktuationen, Bildung von Tropfen der kritischen Größe (vgl. Kapitel IV)) können den Phasenübergang schon vor dem kritischen Punkt verursachen.

Dieses Verhalten ist für einen Phasenübergang 1. Ordnung charakteristisch. Bei einem Phasenübergang 2. Ordnung hingegen ist die lineare Analyse durchaus in der Lage, die tatsächlichen Instabilitäten des Systems aufzuzeigen (vgl. diverse Beispiele in Ref. 6). In der Nähe des kritischen Punktes zeigt auch ein Phasenübergang 1. Ordnung zunehmend Eigenschaften eines Übergangs 2. Ordnung, bis er am kritischen Punkt vollends zum kontinuierlichen Phasenübergang wird.

Aus diesem Grund erscheint es gerechtfertigt, in der Nähe von T_c auch den in der vorliegenden Arbeit studierten Phasenübergang 1. Ordnung im Elektron-Loch-System mit Methoden zu behandeln, die ursprünglich zur Behandlung von kontinuierlichen Phasenübergängen (2. Ordnung) angewendet wurden (vgl. Kapitel III).

II.3 Numerische Berechnung des Tropfenprofils

Die hydrodynamischen Gleichungen (Kontinuitätsgleichung II.52, Navier-Stokes-Gleichung II.53 mit der Zustandsgleichung II.54) können durch Beschränkung auf radialsymmetrische Probleme vereinfacht werden. Man behandelt also einen kugelförmigen Elektron-Loch-Tropfen im umgebenden Exzitonengas der Dichte $\bar{n}$.

Die gemittelte Kontinuitätsgleichung reduziert sich auf

$$\frac{\partial n}{\partial t} = -\frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} (r^2 n u) + \frac{\bar{n} - n}{\tau} \quad . \quad \text{II.58}$$

Hier ist $n = n(|\vec{r}|, t) = n(r, t)$ und $u(r, t) = \vec{u} \cdot \vec{e}_r$ ($\vec{e}_r$ = Einheitsvektor in radialer Richtung).

Die Navier-Stokes-Gleichung II.53 wird skalar mit $\vec{e}_r$ multipliziert und man erhält

$$\begin{aligned} m \frac{\partial u}{\partial t} = & -\frac{m}{2} \left(\frac{\partial u}{\partial r} \right)^2 - \left(\frac{\partial n}{\partial r} \right) \left(\frac{\partial \mu}{\partial n} \right) + K \left\{ \frac{\partial^3 n}{\partial r^3} + \right. \\ & \left. + \frac{2}{r} \frac{\partial^2 n}{\partial r^2} - \frac{2}{r^2} \frac{\partial n}{\partial r} \right\} - m \beta u \quad . \end{aligned} \quad \text{II.59}$$

Da es sich bei diesen beiden Gleichungen um gekoppelte, nicht-lineare, partielle Differentialgleichungen 3. bzw. 1. Ordnung handelt, erscheint es auch numerisch sehr aufwendig, die vollen zeitabhängigen Lösungen zu berechnen. Zur weiteren Vereinfachung werden daher im weiteren nur die stationären Gleichungen diskutiert. Man berechnet die stationären Lösungen durch direkte numerische Integration des verbleibenden Gleichungssystems.

chungssystems. Die (gewöhnlichen) Differentialgleichungen höherer Ordnung werden durch Einführen neuer Variabler $Y_1(r) = n(r)$ $Y_2(r) = \frac{\partial n}{\partial r}$ $Y_3(r) = \frac{\partial^2 n}{\partial r^2}$ und $Y_4(r) = u(r)$ in ein System von vier gewöhnlichen Differentialgleichungen erster Ordnung transformiert. Bei gegebenen Anfangswerten (Randwerten) läßt sich dieses System mit Hilfe z.B. von modifizierten Prädiktor-Korrektor-Verfahren (vgl. Ref. 28) numerisch gut behandeln.

Doch gerade die Anfangswerte führen in dem vorliegenden Fall auf ein zusätzliches Problem. Die natürlichen Randbedingungen der stationären hydrodynamischen Gleichungen II.58, II.59 gelten im Limes von r gegen unendlich. Legt man den Ursprung des Koordinatensystems in das Tropfenzentrum, dann soll für $r \rightarrow \infty$ die Dichte den Wert der Gasdichte $\bar{n}$ annehmen und die Geschwindigkeit u soll gegen 0 streben. Numerisch erweist es sich jedoch als unmöglich, die Gleichungen von diesem Grenzwert aus zu lösen, da $n(r) = \bar{n}$ und $u = 0$ das Gleichungssystem für alle Werte von r identisch befriedigen. Sobald diese Lösung erreicht wird (sie entspricht einer homogenen Gasphase), erfolgt numerisch keine Abweichung davon, es werden also keine Tropfenlösungen gefunden. Aus diesem Grund ist man darauf angewiesen, das Gleichungssystem von $r = 0$ aus zu lösen. Für den Ursprung existieren aber keine eindeutigen Randbedingungen, die durch das physikalische Problem gegeben sind.

Das Vorgehen in diesem Fall ist so, daß man für kleine Werte von r einen Potenzreihenansatz für n und u macht, diesen in die Gleichungen einsetzt und die Gleichheit der Koeffizienten in jeder Potenz von r fordert.

Die stationären Gleichungen sind: (in dimensionslosen Größen lt. II.39, II.40)

Kontinuitätsgleichung

$$\frac{2}{\tilde{r}} \tilde{n} \tilde{u} + \frac{\partial \tilde{n}}{\partial \tilde{r}} \tilde{u} + \tilde{n} \frac{\partial \tilde{u}}{\partial \tilde{r}} = \tilde{n} - \tilde{n} \quad \text{II.60}$$

Navier-Stokes-Gleichung

$$-\frac{2}{\tilde{r}^2} \frac{\partial \tilde{n}}{\partial \tilde{r}} + \frac{2}{\tilde{r}} \frac{\partial^2 \tilde{n}}{\partial \tilde{r}^2} + \frac{\partial^3 \tilde{n}}{\partial \tilde{r}^3} = \tilde{\gamma} \tilde{u} \frac{\partial \tilde{u}}{\partial \tilde{r}} + \frac{\partial \tilde{n}}{\partial \tilde{r}} \frac{\partial \tilde{u}}{\partial \tilde{r}} + \beta' \tilde{\gamma} \tilde{u} \quad \text{II.61}$$

Für kleine r macht man den Ansatz

$$\tilde{n}(r) = \sum_{i=0}^{\infty} n_i r^i \quad \text{II.62}$$

und

$$\tilde{u}(r) = \sum_{i=0}^{\infty} u_i r^i \quad \text{II.63}$$

In der Entwicklung II.63 ist $u_0 = 0$, da im Ursprung (Tropfenzentrum) die Teilchen ruhen. Einsetzen von II.62 und II.63 in II.60 und II.61 liefert die Koeffizienten n_i und u_i als Funktion einer Konstanten n_0 . Diese Konstante n_0 ist die Dichte im Tropfenzentrum.

Weiterhin löst man die Gleichungen II.60 und II.61 im Grenzfall großer r Werte. Man erhält

$$\tilde{n} = \tilde{n} - c \cdot \exp(-\alpha \tilde{r}) \quad ,$$

$$u = - \frac{1}{\alpha \tilde{n}} c \cdot \exp(-\alpha \tilde{r})$$

II.64

mit

$$\alpha = \left\{ -\frac{1}{2} \frac{\partial \tilde{\mu}}{\partial \tilde{n}} + \left[\left(\frac{1}{2} \frac{\partial \tilde{\mu}}{\partial \tilde{n}} \right)^2 + \frac{\beta' \mathcal{F}}{\tilde{n}} \right]^{1/2} \right\}^{1/2}$$

(c = Konstante).

Man geht nun so vor, daß man zunächst einen Wert für n_0 rät (in der Nähe von $\mu(n_0) = \mu(\tilde{n})$), dann setzt man die Entwicklungen II.62 und II.63 mit den berechneten Koeffizienten n_i und u_i für kleine r -Werte in das Gleichungssystem ein und berechnet die Lösungen mit einem Prädiktor-Korrektor Verfahren. Die so gefundenen Lösungen vergleicht man für große r mit der Entwicklung II.64. Stimmen die numerischen Resultate nicht mit der analytischen Entwicklung überein, so rät man einen neuen Wert von n_0 u.s.w., bis die asymptotische Form erreicht wird.

Beispiele für die so gefundenen Lösungen sind in den Figuren 4 - 7 (Seiten 35 - 38) für die jeweils angegebenen Parameter aufgetragen. Die Größe $\mathcal{F}$ wurde mit $5 \cdot 10^{-4}$ unrealistisch groß gewählt⁴⁾. Für realistische Werte von $\mathcal{F}$ reicht die numerische Genauigkeit nicht aus, konsistente Lösungen zu berechnen.

In Figur 4 sind die Dichte $n(r)$ und die Geschwindigkeit $u(r)$ gegen r aufgetragen. (Ähnliche Ergebnisse hat auch Silver⁴⁾ gefunden.) Man erkennt das Profil eines Elektron-Loch-Tropfens. Die Dichte im Tropfenzentrum ($n_0 \approx 1,73$) ist höher als die Flüssigkeitsdichte, die aus der Maxwellkonstruktion für $\mu(n)$

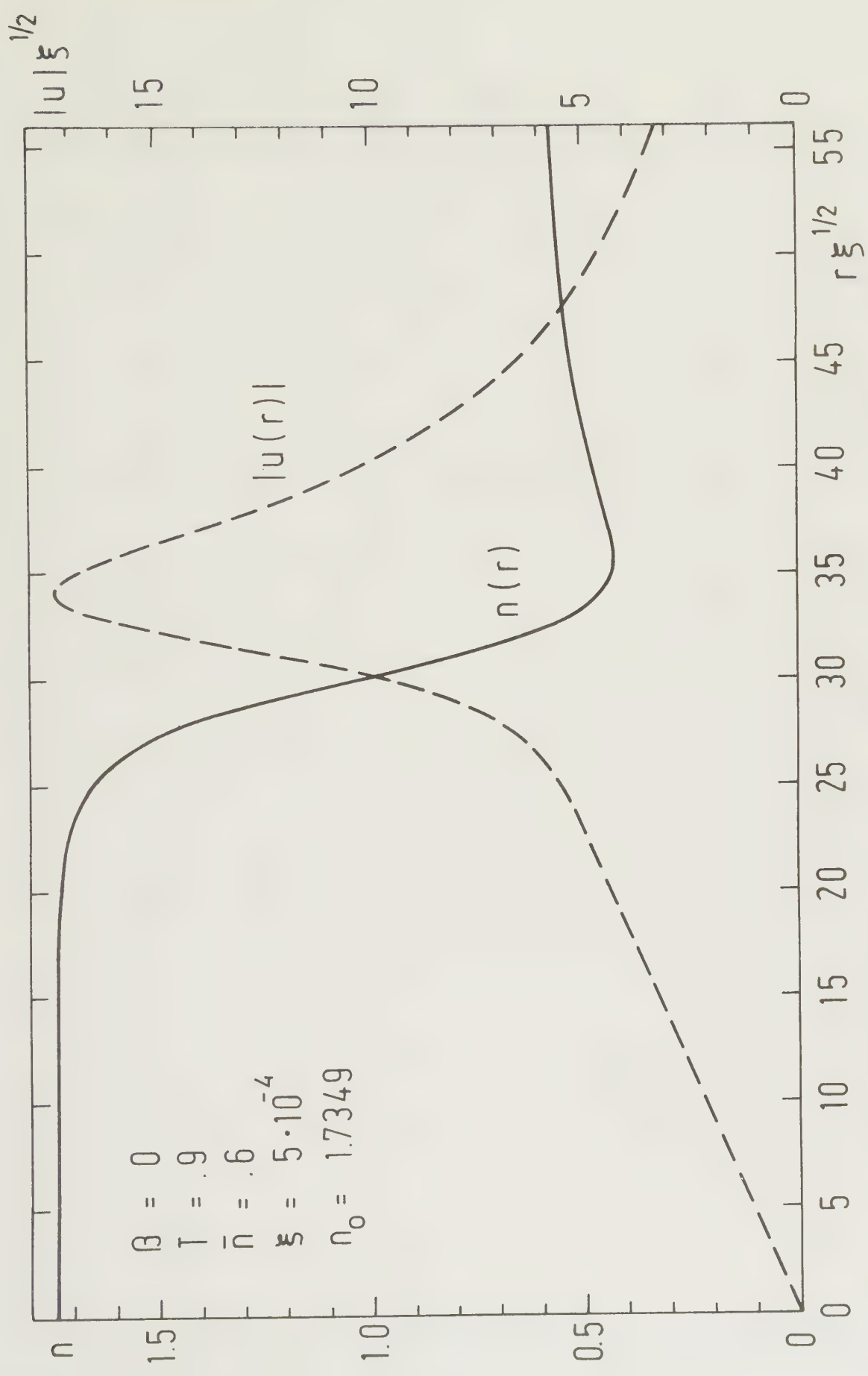


Fig. 4 Dichte- und Geschwindigkeitsprofil $n(r)$, $|u(r)|$ eines Elektron-Loch-Tropfens im Exzitonenngas als Funktion des Abstandes r vom Tropfenzentrum für eine Dämpfungskonstante $\beta=0$. (Ergebnis der numerischen Integration des Gleichungssystems II.60-II.61)

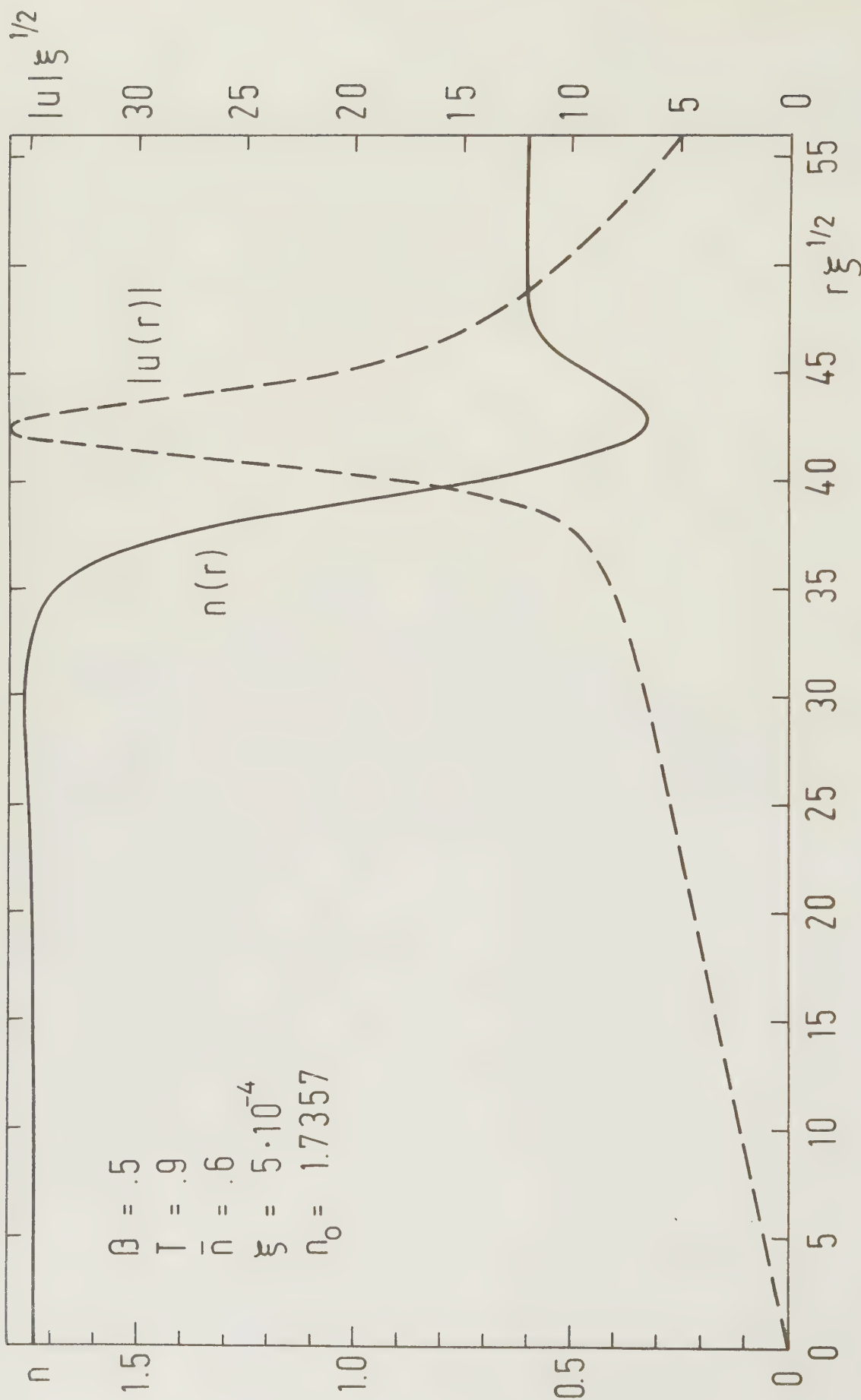


Fig. 5 Dichte- und Geschwindigkeitsprofil eines Elektron-Loch-Tropfens im Exzitonengas. ($\beta = .5$)

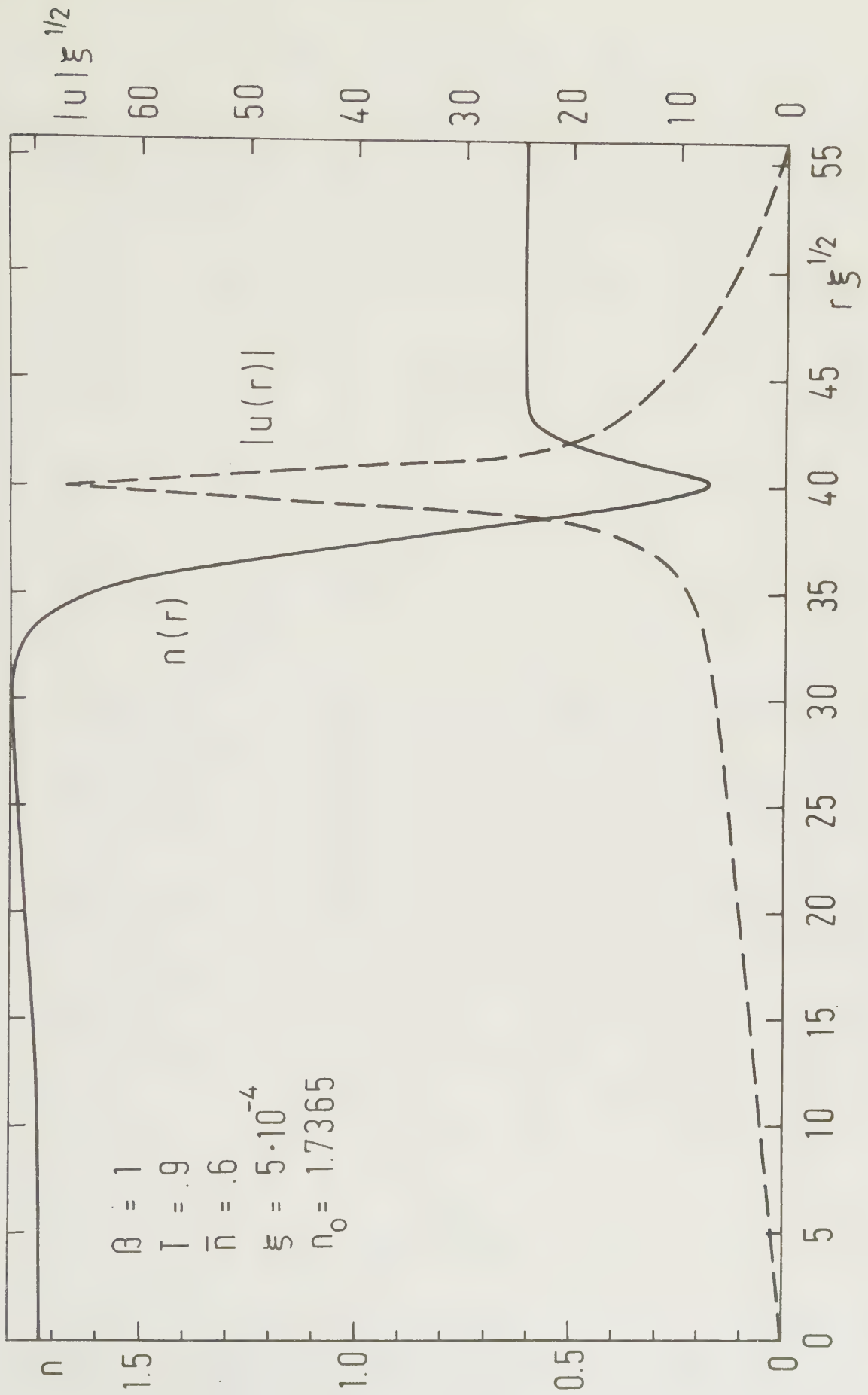


Fig. 6 Dichte- und Geschwindigkeitsprofil eines Elektron-Loch-Tropfens im Exzitonengas. ($\beta = 1$.)

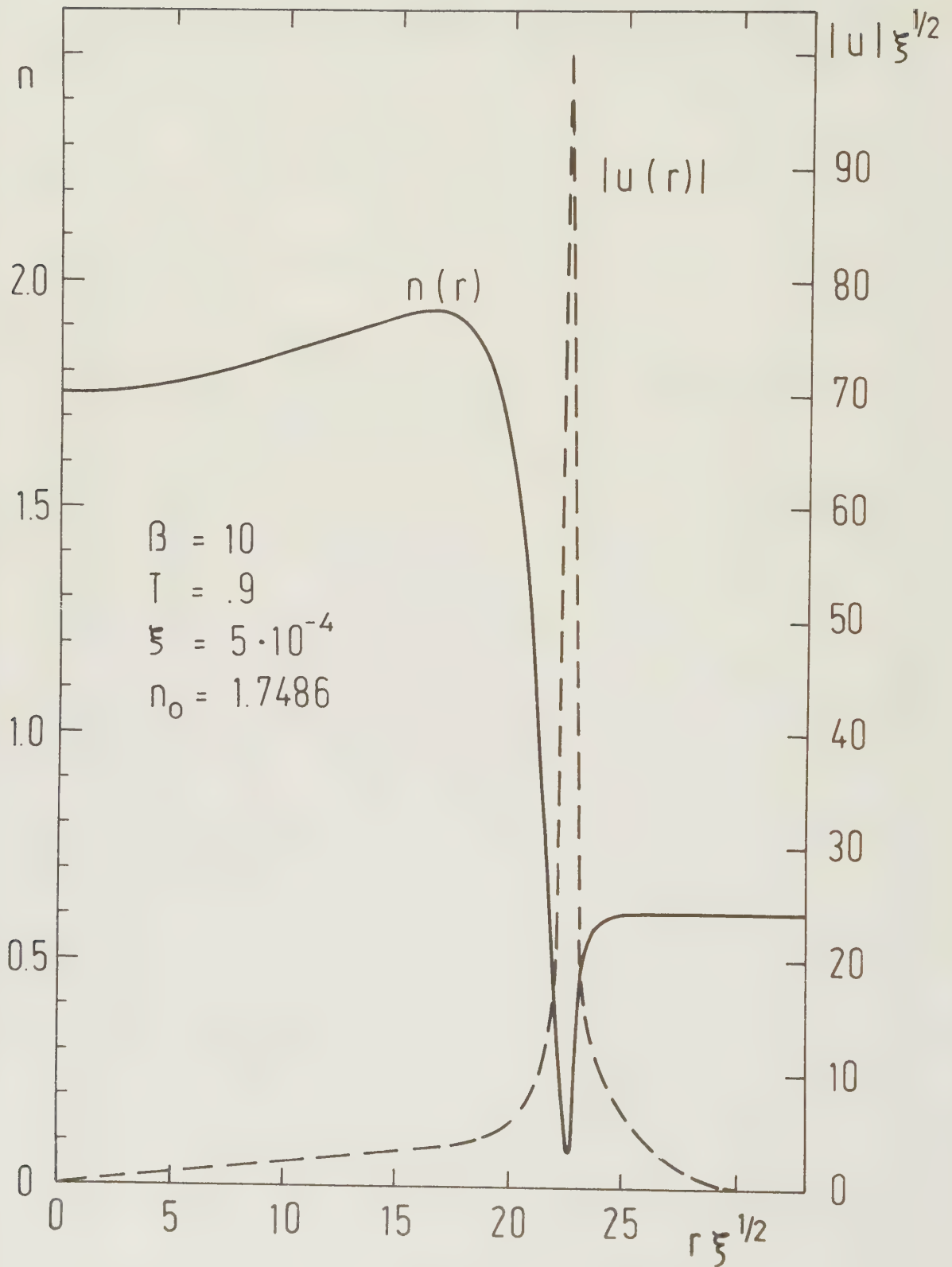


Fig. 7 Dichte- und Geschwindigkeitsprofil eines Elektron-Loch-Tropfens im Exzitonengas ($\beta = 10$.)

(II.54) als ≈ 1.63 bestimmt wird. Da die Lebensdauer der Elektron-Loch-Paare endlich ist, kann ein Tropfen mit konstantem Radius nur existieren, wenn Teilchen aus dem umgebenden Gas nachgeliefert werden. Dies zeigt das eingezeichnete Geschwindigkeitsprofil deutlich. Die Geschwindigkeit ist negativ, d.h. die Teilchen strömen zu dem Tropfen. Gerade außerhalb des Tropfens hat die Geschwindigkeitsverteilung ein wohl ausgebildetes Maximum. Korrespondierend dazu zeigt das Dichteprofil ein Unterschwingen unter die Gasdichte $\bar{n}$. Durch die Rekombination der Teilchen im Tropfen tritt also eine 'Verarmungszone' außerhalb des Tropfens auf, die die Teilchen mit einer besonders hohen Geschwindigkeit durchqueren, um in den Tropfen zu gelangen.

Die Figuren 5,6 und 7 zeigen die gleichen Funktionen wie Figur 4 bei im wesentlichen den gleichen Parametern. Lediglich die Dämpfungskonstante β wurde variiert. Man erkennt, wie mit wachsendem β die Strukturen immer schärfer werden. Durch die anwachsende Dämpfung können die Teilchen von außerhalb nicht mehr so leicht zu dem Tropfen gelangen. Um dennoch einen stationären Tropfen aufrecht erhalten zu können, sinkt die Dichte in der Verarmungszone um den Tropfen herum immer stärker ab und die Teilchen werden in diesem Bereich immer schneller. Außerdem wird bei großen β -Werten der Tropfenradius immer kleiner.

Definiert man als Radius den kleinsten r -Wert, für den $n(r) = \bar{n}$ wird, so kann man den Radius als Funktion der Dämpfungskonstanten auftragen (Figur 8, Seite 40). In dem Bereich $10^{-2} \lesssim \beta' \lesssim .5$ erkennt man ein anormales Anwachsen des Radius mit wach-

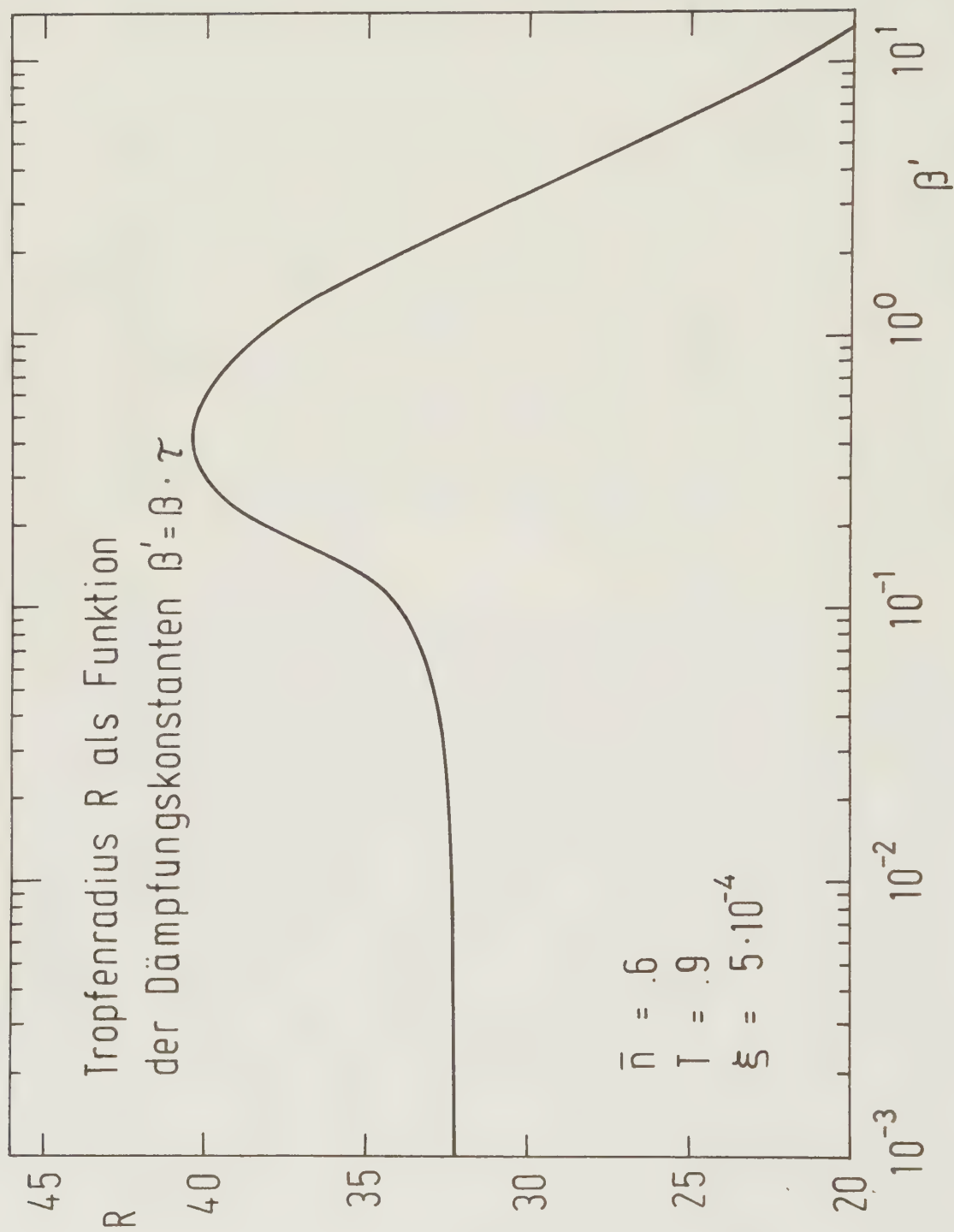


Fig. 8 Tropfenradius R als Funktion der Dämpfungskonstanten β .

sender Dämpfung. Für größere β -Werte fällt der Radius dann steil ab, was man auch aus physikalischen Überlegungen erwarten würde. Die Ursache für das anormale Verhalten des Tropfenradius ist nicht klar durchschaut; dieser Bereich ist aber auch in der Realität weitgehend irrelevant, da eine grobe Abschätzung zeigt, daß die tatsächlichen Werte der Dämpfungskonstanten β' erheblich größer als 1 zu wählen sind ($\beta' = 1$ heißt $\beta = 1/\tau$.)

Man kann β folgendermaßen abschätzen:

Aus der Newton'schen Gleichung

$$m \dot{v} = eE - m \beta v$$

(E = elektrisches Feld, e = Elementarladung, v = Geschwindigkeit) folgt im stationären Fall $v = eE/m\beta$. Daraus erhält man

$$n e v = j = \frac{n e^2}{m \beta} E = \mathcal{G} E$$

(j = Strom, $\mathcal{G}$ = Leitfähigkeit). Die Beweglichkeit wird definiert als $\mu = \mathcal{G}/ne = e/m\beta$ und ist z.B. mittels Hall-Experimenten bestimmbar²⁹⁾. Damit kennt man grob die Größenordnung von β' . Sie liegt für die meisten intrinsischen Materialien bei ca. 10 - 100 für Temperaturen um 4 K, also weit oberhalb des anormalen Bereichs in Figur 8.

III Verallgemeinerte Ginzburg-Landau-Theorie

Der Phasenübergang im hochangeregten Halbleiter ist ein Beispiel für einen Phasenübergang in einem offenen System. Die Teilchenzahl und damit auch die Energie ist keine Erhaltungsgröße des Systems. Wegen der endlichen Lebensdauer der elektronischen Anregungen kann eine im Mittel konstante Dichte nur durch ständiges "äußeres Pumpen" aufrecht erhalten werden.

Andere Beispiele für Phasenübergänge in offenen Systemen sind die hydrodynamische Konvektionsinstabilitäten^{6,30,31,32}) (Bénard und Taylor Problem) und der Laser^{6,32,33}). Bei der Bénard- und der Taylor-Instabilität und bei dem Laser handelt es sich um kontinuierliche Phasenübergänge. Lediglich ein Laser mit einem sättigbaren Absorber^{34,35}) kann unter gewissen Umständen ein Beispiel für einen Phasenübergang 1. Ordnung darstellen. Dieser Phasenübergang ist jedoch nur 'schwach' erster Ordnung, da er bei Variation der Sättigungsintensität des Absorbers kontinuierlich aus einem Phasenübergang 2. Ordnung hervorgeht.

Die Tropfennukleation im hochangeregten Halbleiter hingegen ist ein typischer Phasenübergang 1. Ordnung. Eine lineare Analyse (vgl. Kapitel II.2.c der vorliegenden Arbeit) ist deshalb keine problemangepaßte Behandlungsmethode, da die Nichtlinearitäten in den charakteristischen Gleichungen wesentlich bei der Diskussion des Phasenübergangs berücksichtigt werden müssen. Eine exakte analytische Behandlung der Nichtlinearitäten in den hydrodynamischen Gleichungen erscheint unmöglich mit den gegenwärtig bekannten Methoden. Deshalb diskutieren wir im folgenden die Elektron-Loch-Tropfennukleation in der Nähe des

kritischen Punktes, wo auch dieser Phasenübergang nur schwach von erster Ordnung ist.

Die hydrodynamischen Gleichungen II.58 und II.59 werden im Rahmen einer auf offene Systeme verallgemeinerten Ginzburg-Landau-Methode^{6,36)} behandelt (vgl. Ref. 5).

III.1 Umformulierung des hydrodynamischen Gleichungssystems

In der verallgemeinerten Ginzburg-Landau-Theorie löst man zunächst das Eigenwertproblem des linearen Anteils der Gleichungen (vgl. Kapitel II.2.c) und entwickelt die Lösungen der nichtlinearen Gleichungen nach den Eigenmoden der linearen Analyse.

Zur expliziten Durchführung der Theorie erweist es sich als sehr nützlich, das hydrodynamische Gleichungssystem II.58 und II.59 (für radialsymmetrische Tropfenlösungen) umzuformulieren. Beschränken wir uns wiederum auf wirbelfreie Strömungen, so können wir die Geschwindigkeit durch das skalare Potential φ ausdrücken (II.3)

$$u(r) = -\frac{\partial}{\partial r} \varphi(r) . \quad \text{III.1}$$

Zerlegen wir die Dichte

$$\tilde{n}(r) = \bar{n} + n(r) \quad \text{III.2}$$

(n = dimensionslose Dichte lt. II.39, II.40) in die Gasdichte $\bar{n}$ plus Abweichungen davon, so lautet die Kontinuitätsgleichung in dimensionslosen Variablen:

(Auf die besondere Kennzeichnung der dimensionslosen Größen wird im weiteren verzichtet, da im vorliegenden Kapitel III keine unskalierten Größen mehr auftreten und Verwechslungen damit unmöglich sind.)

$$\frac{\partial n}{\partial t} = -\bar{n} \Delta_r \varphi - n \Delta_r \varphi - \frac{\partial n}{\partial r} \frac{\partial \varphi}{\partial r} - n \quad \text{III.3}$$

Hierbei ist $\Delta_r = \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} r^2 \frac{\partial}{\partial r}$ der Radialanteil des Laplace-Operators. Die Navier-Stokes-Gleichung II.59 wird unbestimmt über r integriert. Man erhält

$$\frac{\partial \varphi}{\partial t} = -\frac{1}{2} \left(\frac{\partial \varphi}{\partial r} \right)^2 + \int \Delta_r n + \mu(\bar{n}) - \mu(\bar{n} + n) - \beta \varphi \quad \text{III.4}$$

Die auftretende Integrationskonstante ist $\mu(\bar{n})$, da $n = 0$ (also homogene Gasphase) und $\varphi = \text{const.}$ (also $u = 0$) weiterhin eine Lösung des Gleichungssystems sein muß.

Um die linearen Terme der beiden Gleichungen III.3 und III.4 getrennt behandeln zu können, stellen wir das chemische Potential $\mu(\bar{n} + n)$ durch seine Taylorreihe dar

$$\mu(\bar{n} + n) = \mu(\bar{n}) + n \mu^{(1)}(\bar{n}) + \sum_{j=2}^{\infty} \frac{n^j}{j!} \mu^{(j)}(\bar{n}) \quad \text{III.5}$$

Dabei soll $\mu^{(j)}(\bar{n})$ die j -te Ableitung des chemischen Potentials nach der Dichte n an der Stelle $n = \bar{n}$ sein. Einsetzen von III.5 in III.4 liefert

$$\frac{\partial \varphi}{\partial t} = -\frac{1}{2} \left(\frac{\partial \varphi}{\partial r} \right)^2 + \int \Delta_r n - n \mu^{(1)}(\bar{n}) - \sum_{j=2}^{\infty} \frac{n^j}{j!} \mu^{(j)}(\bar{n}) - \beta \varphi \quad \text{III.6}$$

Wir definieren einen Vektor $\vec{q}$ als

$$\vec{q}(r, t) = \begin{pmatrix} n(r, t) \\ \varphi(r, t) \end{pmatrix} \quad \text{III.7}$$

Damit läßt sich das Gleichungssystem III.3 und III.6 in einheitlicher Form schreiben

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} + \underline{K}(\Delta_r) \right) \vec{q} = \vec{g}(\vec{q}) \quad \text{III.8}$$

Hierbei ist $\underline{K}$ der lineare Matrix-Operator

$$\underline{K}(\Delta_r) = \begin{vmatrix} 1 & \bar{n} \Delta_r \\ -\int \Delta_r + \mu^{(1)}(\bar{n}) & \beta \end{vmatrix} \quad \text{III.9}$$

und der Vektor $\vec{g}$ enthält alle Nichtlinearitäten

$$\vec{g} = \begin{pmatrix} -\frac{\partial n}{\partial r} \frac{\partial \varphi}{\partial r} - n \Delta_r \varphi \\ -\frac{1}{2} \left(\frac{\partial \varphi}{\partial r} \right)^2 - \sum_{j \geq 2} \frac{n^j}{j!} \mu^{(j)}(\bar{n}) \end{pmatrix} \quad \text{III.10}$$

III.2 Eigenwerte und -vektoren des linearen Matrixoperators

Für die spätere Entwicklung des Vektors $\vec{q}$ müssen zunächst die Eigenvektoren des linearen Matrix-Operators $\underline{K}(\Delta, r)$ berechnet werden. In Matrixschreibweise ist das Eigenwertproblem gegeben durch

$$\underline{K} \vec{X}_i(r) = \omega_i \vec{X}_i(r) \quad \text{III.11}$$

Die $\vec{X}_i$ sind die rechtshändigen Eigenvektoren von $\underline{K}$. Der Index i läuft über die verschiedenen Eigenmoden.

Da der Matrixoperator $\underline{K}$ nicht selbstadjungiert ist, führen wir auch linkshändige Eigenvektoren $\tilde{X}_i(r)$ ein:

$$\tilde{X}_i(r) \underline{K} = \omega_i \tilde{X}_i(r) \quad \text{III.12}$$

Die links- und rechtshändigen Eigenvektoren eines Matrixoperators bilden ein orthogonales System (vgl. Anhang A.1). Es gilt

$$\tilde{X}_i \cdot \vec{X}_j = \delta_{ij} \quad \text{III.13}$$

Um die Eigenvektoren $\vec{X}_i$ explizit berechnen zu können, entwickeln wir sie nach Eigenfunktionen des Matrixoperators $\underline{K}$. Im weiteren Verlauf der Ginzburg-Landau-Theorie sollen die Lösungen $\vec{q}$ des nichtlinearen Gesamtgleichungssystems ihrerseits nach den Eigenvektoren $\vec{X}$ der linearen Matrix entwickelt werden. Im Rahmen der daran anschließenden Analyse erweist es sich daher als sehr sinnvoll, die Eigenfunktionen des Matrixoperators $\underline{K}$ so zu wählen, daß sie dem Nukleationsproblem an-

gepaßt sind (vgl. Kapitel III.4). Diese Forderung wird von den sphärischen Besselfunktionen $j_0(kr)$ erfüllt. Sie sind Eigenfunktionen des Laplace-Operators in Kugelkoordinaten³⁷⁾

$$\Delta_r j_0(kr) = \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} r^2 \frac{\partial}{\partial r} j_0(kr) = -k^2 j_0(kr) \quad \text{III.14}$$

Außerdem gilt

$$\frac{\partial}{\partial r} j_0(kr) = -k j_1(kr) \quad \text{III.15}$$

Die Definitionen für j_0 und j_1 sind

$$j_0(kr) = \frac{\sin(kr)}{kr}$$

und

III.16

$$j_1(kr) = \frac{\sin(kr)}{(kr)^2} - \frac{\cos(kr)}{kr}$$

Die sphärischen Besselfunktionen bilden ein vollständiges Funktionensystem mit den Vollständigkeitsrelationen

$$\int_0^\infty dk k^2 j_\ell(kr) j_\ell(kr') = \frac{\pi}{2r^2} \delta(r-r')$$

und

III.17

$$\int_0^\infty dr r^2 j_\ell(kr) j_\ell(k'r) = \frac{\pi}{2k^2} \delta(k-k')$$

Wir entwickeln nun die Eigenvektoren des Matrixoperators $\underline{K}$ nach $j_0(kr)$

$$\vec{x}_i(r) = \int_0^{\infty} dk k^2 \vec{x}_i(k) j_0(kr). \quad \text{III.18}$$

Einsetzen dieser Entwicklung in III.11, Auswerten der Laplace-Operatoren, Multiplikation des Gleichungssystems mit $j_0(k'r)$, Integration $\frac{2}{\pi} \int_0^{\infty} dr r^2$ und Umbenennung $k' \rightarrow k$ liefert $\left(\vec{x} = \begin{pmatrix} x_1 \\ x_2 \end{pmatrix} \right)$:

$$(1 - \omega_i(k)) x_{i,1}(k) - \bar{n} k^2 x_{i,2}(k) = 0$$

$$(k^2 \mathfrak{F} + \mu^{(1)}(\bar{n})) x_{i,1}(k) + (\beta - \omega_i(k)) x_{i,2}(k) = 0 \quad \text{III.19}$$

Dieses homogene Gleichungssystem für $x_{i,1}$ und $x_{i,2}$ besitzt nur eine Lösung, falls

$$\begin{vmatrix} 1 - \omega_i(k) & -\bar{n} k^2 \\ k^2 \mathfrak{F} + \mu^{(1)}(\bar{n}) & \beta - \omega_i(k) \end{vmatrix} = 0 \quad \text{III.20}$$

erfüllt ist. Diese Lösbarkeitsbedingung liefert das Eigenwert-spektrum $\omega_i(k)$. Es wurde bereits im Rahmen der linearen Analyse (Kapitel II.2.c) als (II.57)

$$\omega_{s/u} = \frac{1 + \beta}{2} \pm \frac{1}{2} \left[(1 - \beta)^2 - 4 \bar{n} k^2 (k^2 \mathfrak{F} + \mu^{(1)}(\bar{n})) \right]^{1/2} \quad \text{III.21}$$

berechnet und ausführlich diskutiert (Figur 3).

Um einen expliziten Ausdruck für die Eigenvektoren $\vec{x}_i(k)$ zu erhalten, entwickeln wir auch die linkshändigen Eigenvektoren $\tilde{x}_i(k)$ nach den Besselfunktionen j_0 . Dies führt auf die Bestimmungsgleichungen

$$\begin{aligned} (1 - \omega_i(k)) \tilde{x}_{i,1}(k) + (k^2 \beta + \mu^{(1)}(\bar{n})) \tilde{x}_{i,2}(k) &= 0 \\ -\bar{n} k^2 \tilde{x}_{i,1}(k) + (\beta - \omega_i(k)) \tilde{x}_{i,2}(k) &= 0. \end{aligned} \quad \text{III.22}$$

Das Gleichungssystem II.19 bzw. II.22 liefert jeweils nur eine Bestimmungsgleichung für $x_{i,j}$, da die andere Gleichung linear abhängig ist. Man hat also nur zwei Beziehungen zwischen vier Unbekannten $x_{i,1}$, $x_{i,2}$, $\tilde{x}_{i,1}$, $\tilde{x}_{i,2}$. Eine dritte Bestimmungsgleichung erhält man aus der Orthogonalitätsrelation III.13. Auf diese Art sind die Eigenvektoren bis auf eine unbekannte Funktion $a = a(k)$ berechenbar. Man erhält

$$\vec{x}_i(k) = \frac{a}{\left(\frac{\beta - \omega_i(k)}{1 - \omega_i(k)} + 1 \right)} \begin{pmatrix} \frac{\bar{n} k^2}{(1 - \omega_i(k))} \\ 1 \end{pmatrix}$$

und

$$\tilde{x}_i(k) = \frac{1}{a} \frac{1}{\left(\frac{\beta - \omega_i(k)}{1 - \omega_i(k)} + 1 \right)} \begin{pmatrix} \frac{\beta - \omega_i(k)}{\bar{n} k^2} \\ 1 \end{pmatrix}. \quad \text{III.23}$$

Da die Eigenwerte $\omega_i(k)$ im allgemeinen komplex sind (vgl. Kap. II.2.c), sind auch die Eigenvektoren II.23 komplexe Funktionen.

III.3 Entwicklung der Lösung des nichtlinearen Gleichungssystems

Für die Lösungsvektoren $\vec{q}$ des nichtlinearen Gleichungssystems III.8 wird ein Ansatz gemacht, der eine Entwicklung nach den Eigenvektoren der linearen Matrix darstellt. Da $\vec{q}$ reelle physikalische Funktionen beschreiben soll, muß dies auch bei dem Ansatz berücksichtigt werden:

$$\vec{q}(r,t) = \sum_{k,l} \frac{1}{2} \left(\vec{x}_l(k) + \vec{x}_l^*(k) \right) j_0(kr) \mathcal{L}_{kl}(t) \quad \text{III.24}$$

(Der Stern bedeutet konjugiert komplex.)

Die gesamte Zeitabhängigkeit des Lösungsvektors $\vec{q}(r,t)$ ist in der Entwicklungsamplitude $\mathcal{L}_{kl}(t)$ enthalten. Die k -Werte werden als diskret angenommen, d.h. wir haben eine Art 'coarse graining' durchgeführt. Die kontinuierlichen k -Werte werden in Bereiche unterteilt, von denen jeder durch einen (repräsentativen) k -Wert erfaßt wird. Diese Diskretisierung der k -Werte kann man physikalisch rechtfertigen. In der Realität sind nämlich in einem angeregten Halbleiterkristall stets mehrere Tropfen vorhanden. Denkt man sich den Kristall in Zellen zerlegt, in deren jeweiligem Zentrum ein Tropfen existiert, so ist dieser Zellradius sicher endlich. In einem endlichen Normierungsvolumen jedoch sind die erlaubten k -Werte diskret.

Bei dem Ansatz III.24 stören noch die unbekannten Funktionen $a(k)$ in den Eigenvektoren der linearen Matrix $\underline{K}$. Dieses Problem kann beseitigt werden, wenn man definiert

$$\vec{Q}_\ell(k) = \frac{1}{a(k)} \vec{X}_\ell(k)$$

und

$$y_{k\ell}(t) = a(k) x_{k\ell}(t) .$$

Damit erhält man aus III.24

$$\vec{q}(r,t) = \sum_{\ell,k} \frac{1}{2} \left(\vec{Q}_\ell(k) + \vec{Q}_\ell^*(k) \right) j_0(kr) y_{k\ell}(t) , \quad \text{III.25}$$

die Funktionen $a(k)$ wurden in der bisher unbekannten Entwicklungsamplitude $y_{k\ell}(t)$ absorbiert. Für diese effektive Entwicklungsamplitude soll nun eine Bestimmungsgleichung hergeleitet werden.

Man setzt die Entwicklung III.25 in das nichtlineare Gleichungssystem III.8 ein und wendet die Operation

$$\int dr \, r^2 \frac{1}{2} \left(\tilde{\vec{Q}}_\ell + \tilde{\vec{Q}}_\ell^* \right) j_0(kr) . \quad \text{III.26}$$

auf die resultierenden Terme an. Auf diese Art erhält man (bis zur dritten Ordnung in y):

$$\frac{\partial}{\partial t} y_{k\ell} + \frac{1}{2} \left(\omega_\ell(k) + \omega_\ell^*(k) \right) y_{k\ell} = \quad \text{III.27}$$

$$= - \sum_{\substack{\ell' \ell'' \\ k' k''}} y_{k'\ell'} y_{k''\ell''} B_{\ell \ell' \ell''}^{k k' k''} - \sum_{\substack{\ell' \ell'' \tilde{\ell} \\ k' k'' \tilde{k}}} y_{k'\ell'} y_{k''\ell''} y_{\tilde{k}\tilde{\ell}} C_{\ell \ell' \ell'' \tilde{\ell}}^{k k' k'' \tilde{k}} .$$

Hierbei ist

$$B_{\ell\ell'\ell''}^{kk'k''} = \frac{1}{8} J_{kk'k''}^{ooo} \left(\frac{1}{2} a_{\bar{2}11}^{\ell\ell'\ell''} \mu^{(2)}(\bar{n}) - a_{\bar{1}12}^{\ell\ell'\ell''} k''^2 \right) \\ + \frac{1}{8} J_{kk'k''}^{o11} k'k'' \left(a_{\bar{1}12}^{\ell\ell'\ell''} + \frac{1}{2} a_{\bar{2}22}^{\ell\ell'\ell''} \right) \quad \text{III.28}$$

wobei

$$J_{kk'k''}^{imn} = \int dr r^2 j_i(kr) j_m(k'r) j_n(k''r) \quad \text{III.29}$$

und

$$a_{\bar{i}mn}^{\ell\ell'\ell''} = (\bar{Q}_{i,\ell} + \bar{Q}_{i,\ell}^*) (Q_{m,\ell'} + Q_{m,\ell'}^*) (Q_{n,\ell''} + Q_{n,\ell''}^*) \quad \text{III.30}$$

Der Koeffizient in dem Term $\propto \gamma^3$ in Gleichung III.27 ist definiert als

$$C_{\ell\ell'\ell''\tilde{\ell}}^{kk'k''\tilde{k}} = \frac{1}{96} \mu^{(3)}(\bar{n}) a_{\bar{2}111}^{\ell\ell'\ell''\tilde{\ell}} J_{kk'k''\tilde{k}}^{oooo} \quad \text{III.31}$$

wobei $a_{\bar{i}mno}^{\ell\ell'\ell''\tilde{\ell}}$ und $J_{kk'k''\tilde{k}}^{oooo}$ durch Erweiterung von III.30 bzw. III.29 von jeweils drei auf vier Faktoren mit den entsprechenden Indizes gegeben sind.

Wie man bereits rein äußerlich an der komplizierten Notation erkennt, ist die Gleichung III.27 viel zu komplex, um exakt gelöst werden zu können. Sie wird deshalb im folgenden noch vereinfacht werden.

III.4 Definition und Bewegungsgleichung des Ordnungsparameters

Gleichung III.27 wird (wie die gesamte Analyse in dem vorliegenden Kapitel III) in der Nähe des kritischen Punktes angewendet. Hier zeigt die lineare Analyse (Kapitel II.2.c) die Instabilität des Systems an und es ist gerechtfertigt, die Moden in eine stabile ($\operatorname{Re} \omega_s(k) > 0, \forall k$) und eine instabile Mode zu zerlegen. Die instabile Mode wird bei Variation der äußeren Parameter (im wesentlichen $\bar{n}$) bei einem k -Wert zuerst entdämpft. Diesen k -Wert bezeichnen wir mit k_c :

$$\left(\operatorname{Re} \omega_u(k_c) = 0, \quad \operatorname{Re} \omega_u(k \neq k_c) > 0 \right).$$

Die Leitlinie der weiteren Approximationen ist nun die folgende Überlegung^{6,36)}: Würden die Nichtlinearitäten in den hydrodynamischen Gleichungen vernachlässigt, so könnte die entdämpfte Mode mit der Zeit unbeschränkt anwachsen. Wir nehmen deshalb an, daß ihre Amplitude wesentlich größer ist, als die der gedämpften Moden. Deshalb vernachlässigen wir in Gleichung III.27 die Mode mit dem Eigenwert $\omega_s(k)$ vollständig. Bei der Amplitude $\gamma_{u,k}$ der instabilen Mode wird der Bereich $k = k_c$ gesondert behandelt. In diesem Bereich findet die Entdämpfung zuerst statt und γ_{u,k_c} wächst mit der Zeit an. Alle anderen Amplituden bleiben gedämpft. Das Zeitverhalten des Gesamtsystems wird im wesentlichen also durch $\gamma_{u,k_c}(t)$ bestimmt, die anderen Amplituden folgen adiabatisch.

Sie sind zwar klein im Vergleich zu γ_{u,k_c} , sollen aber trotzdem nicht völlig vernachlässigt werden, da sie zur Stabilisierung des Phasenübergangs beitragen können. Wir werden daher im

folgenden für $\gamma_{u,k}$ ($k \neq k_c$) ein adiabatisches Eliminationsverfahren anwenden, um eine effektive Gleichung für γ_{u,k_c} zu erhalten. Diese herausgegriffene Amplitude hat im Rahmen unserer Analyse die Funktion eines Ordnungsparameters.

In Bezug auf die Lösung $\vec{q}$ (III.25) des Gesamtgleichungssystems bedeuten die oben ausgeführten Näherungen eine Beschränkung auf einen effektiven Einmodenansatz. Dieser Einmodenansatz ist nur möglich, da bei der Entwicklung nach Eigenfunktionen des linearen Matrixoperators Funktionen verwendet wurden (j_0), die dem Nukleationsproblem angepaßt sind. Daß ein solcher Einmodenansatz in der Lage ist, qualitativ das Dichte- und Geschwindigkeitsprofil eines Elektron-Loch-Tropfens zu beschreiben, sieht man in Figur 9. Dick eingezeichnet ist das Dichteprofil eines Tropfens im Gas und das zugehörige Geschwindigkeitsprofil. Diese Lösungen wurden durch direkte numerische Integration der stationären hydrodynamischen Gleichungen gewonnen (vgl. Kapitel II.3 der vorliegenden Arbeit). Im Vergleich dazu ist dünn der Einmodenansatz eingezeichnet. Es liefert zwar ein qualitativ richtiges Bild, kann jedoch die scharfen Strukturen der exakten Lösung nicht wiedergeben. Dazu müßten mehrere Moden berücksichtigt werden. Da es uns im weiteren jedoch mehr auf prinzipielle Eigenschaften des Phasenübergangs ankommt, haben wir uns auf diesen effektiven Einmodenansatz beschränkt.

Zunächst sollen im folgenden die Details der oben angesprochenen Eliminationsprozedur diskutiert werden:

Da die stabile Mode $\ell = s$ vollständig vernachlässigt wird, kann der Modenindex im weiteren entfallen, alle Größen beziehen sich auf die instabile Mode $\ell = u$. Weiterhin gilt

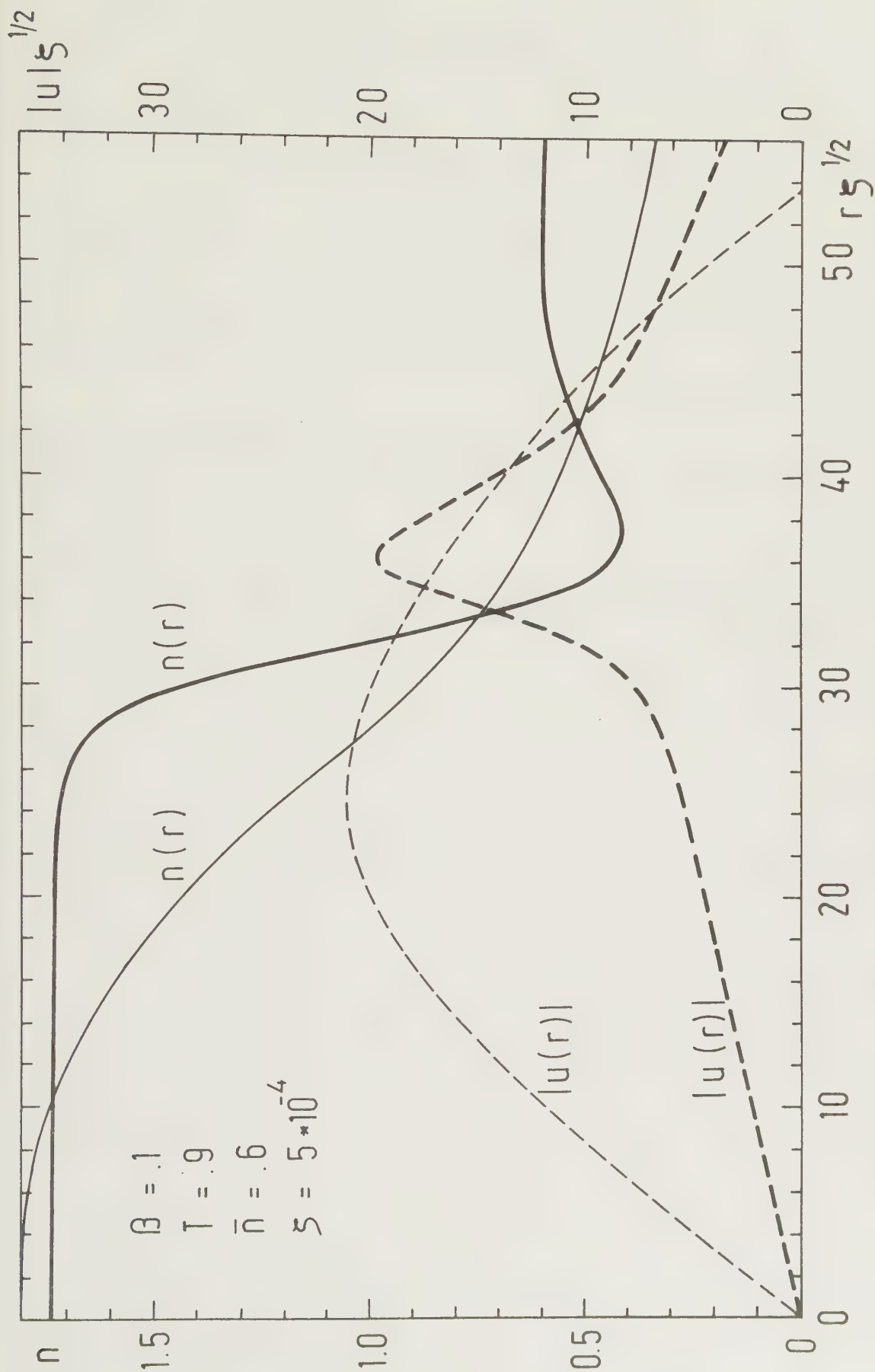


Fig. 9 Dichte- und Geschwindigkeitsprofil eines Elektron-Loch-Tropfens im Exzitonengas:
 — $n(r)$, --- $|u(r)|$ numerische Integration des Gleichungssystems II.60 - II.61
 — $n(r)$, --- $|u(r)|$ Einmodenansatz

$$|\gamma_{k_c}| \gg |\gamma_{k \neq k_c}| \quad \text{III.32}$$

Darüberhinaus macht man die selbstkonsistente Annahme

$$\gamma_{k_c}^2 \propto \gamma_{k \neq k_c} \quad \text{III.33}$$

Damit erhält man aus Gleichung III.27 eine Gleichung für γ_{k_c} (bis zur dritten Ordnung in γ_{k_c}):

$$\frac{\partial}{\partial t} \gamma_{k_c} + \frac{1}{2} (\omega(k_c) + \omega^*(k_c)) \gamma_{k_c} = -\gamma_{k_c}^2 B^{k_c k_c k_c} \quad \text{III.34}$$

$$- \gamma_{k_c} \sum_{\substack{k \\ (k \neq k_c)}} \gamma_k (B^{k_c k k_c} + B^{k_c k_c k}) - \gamma_{k_c}^3 C^{k_c k_c k_c k_c}$$

und eine Gleichung für $\gamma_{k \neq k_c}$

$$\frac{\partial}{\partial t} \gamma_k + \frac{1}{2} (\omega(k) + \omega^*(k)) \gamma_k = -\gamma_{k_c}^2 B^{k_c k_c k_c} \quad \text{III.35}$$

In Gleichung III.35 wurden nur die Terme berücksichtigt, die nach der adiabatischen Eliminationsprozedur zu Termen in III.35 führen, die höchstens von der Ordnung $\gamma_{k_c}^3$ sind.

Da das Zeitverhalten des Gesamtsystems wesentlich durch $\gamma_{k_c}(t)$ bestimmt wird und die anderen Moden dieser entdämpften Mode adiabatisch folgen, kann man die Zeitableitung in III.35 gegen $(\omega + \omega^*)$ vernachlässigen (adiabatische Approximation) und man erhält

$$\gamma_{k \neq k_c} = -2 \gamma_{k_c}^2 \frac{B^{k_c k_c k_c}}{(\omega(k) + \omega^*(k))} \Big|_{k \neq k_c} \quad \text{III.36}$$

in selbstkonsistenter Übereinstimmung mit III.33.

Einsetzen von III.36 in III.34 liefert die Bestimmungsgleichung für γ_{k_c} als

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \gamma_{k_c} = & -\frac{1}{2} (\omega(k_c) + \omega^*(k_c)) \gamma_{k_c} - B^{k_c k_c k_c} \gamma_{k_c}^2 \\ & - \gamma_{k_c}^3 \left[C^{k_c k_c k_c k_c} - 2 B^{k_c k_c k_c} \sum_{\substack{k \\ (k \neq k_c)}} \left(\frac{B^{k_c k_c k_c}}{\omega(k) + \omega^*(k)} + B^{k_c k_c k} \right) \right] \end{aligned} \quad \text{III.37}$$

Wie man erkennt, folgt aus der Gleichung für die gedämpfte Mode durch die adiabatische Eliminationsprozedur ein Zusatzterm $\propto \gamma_{k_c}^3$ in der Gleichung für den Ordnungsparameter. Der Term mit der höchsten Potenz von γ_{k_c} , der in der Bestimmungsgleichung III.37 berücksichtigt wird, sichert die globale Stabilität des Systems (vgl. Kapitel III.5). Die gedämpften Moden können also durchaus mit zur Stabilisierung des Phasenübergangs beitragen.

III.5 Berechnung des verallgemeinerten Ginzburg-Landau-Potentials

Definiert man ein Potential V als

$$V = A \gamma_{k_c}^2 + B \gamma_{k_c}^3 + C \gamma_{k_c}^4 \quad \text{III.38}$$

mit

$$A = \frac{1}{4} (\omega(k_c) + \omega^*(k_c)),$$

$$B = \frac{1}{3} B^{k_c k_c k_c}$$

und

$$C = \frac{1}{4} \left[C^{k_c k_c k_c k_c} - 2 B^{k_c k_c k_c} \sum_{\substack{k \\ (k \neq k_c)}} \left(\frac{B^{k_c k k_c} + B^{k_c k_c k}}{\omega(k) + \omega^*(k)} \right) \right],$$

so kann man die Gleichung für den Ordnungsparameter γ_{k_c} (III.37) in der einfachen Form

$$\frac{\partial}{\partial t} \gamma_{k_c} = - \frac{\partial}{\partial \gamma_{k_c}} V \quad \text{III.39}$$

schreiben. Diese Gleichung kann als Bewegungsgleichung eines überdämpften Teilchens in dem Potential V interpretiert werden.

Die Koeffizienten A, B, C in dem Potential III.38 sind komplizierte Funktionen der Pumpstärke $\bar{n}$ (vgl. III.28 - III.31 und III.21, III.23). Außerdem hängen sie über das chemische Potential μ (II.54) auch von der Temperatur ab. Um das Potential

explizit diskutieren zu können, müssen die Koeffizienten berechnet werden. Bei dieser Rechnung treten keine prinzipiellen Schwierigkeiten auf, doch wegen der Vielzahl der Terme ist sie sehr umfangreich. Da die analytischen Ausdrücke für A, B, C im Detail auch nicht sehr informativ sind, soll die explizite Berechnung hier nicht geschildert werden. Wichtig sind lediglich die folgenden Eigenschaften der Koeffizienten: Bei niedriger Pumpstärke $\bar{n}$ sind A, B, C positiv. In einem mittleren Bereich von $\bar{n}$ ist A immer noch positiv ($\mu^{(1)}(\bar{n}) > 0$), aber B wird negativ. Bei noch größerer Pumpstärke wird auch A negativ ($\mu^{(1)}(\bar{n}) < 0$). C ist immer positiv.

In Figur 10 (Seite 60) wird das Potential V gegen die Amplitude γ_{k_c} aufgetragen. Es zeigt die typischen Eigenschaften eines Phasenübergangs 1. Ordnung. Die Potentialminima sind die stationären Lösungen der Gleichung III.39. Die zugehörigen Amplitudenwerte charakterisieren die zeitlich konstante Dichteverteilung im Gesamtsystem der elektronischen Anregungen. Der Lösungsansatz III.25 zeigt, daß aus $\gamma = 0$ auch $\vec{q} = 0$ folgt. $\vec{q} = 0$ heißt $n = 0$ und $\varphi = 0$. Da n die Abweichung der aktuellen Dichte von der Gasdichte $\bar{n}$ ist (III.2) bedeutet die Lösung $\gamma = 0$ also homogene Gasphase im Gesamtsystem, kein Elektron-Loch-Tropfen ist vorhanden.

Mit wachsender Pumpstärke $\bar{n}$ bildet sich allmählich neben dem Minimum bei $\gamma = 0$ ein zweites Potentialminimum bei endlicher Amplitude $\gamma \neq 0$, das schließlich zum Hauptminimum wird (vgl. Figur 10 a-d). Laut Lösungsansatz III.39 charakterisieren positive Amplituden Tropfenlösungen nebst zugehöriger Geschwindigkeitsverteilung (vgl. Figur 9). Diese Lösungen

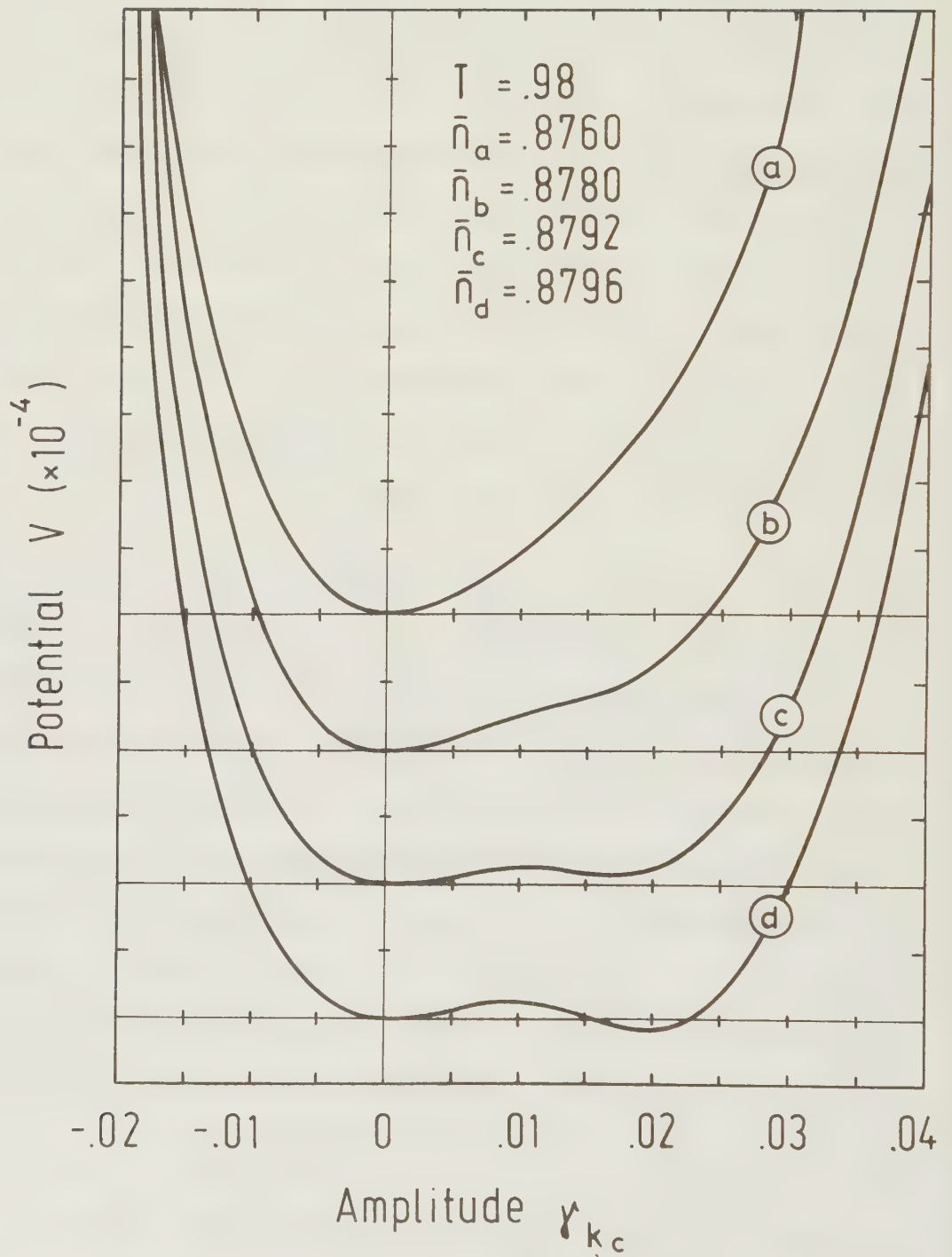


Fig. 10 Ginzburg-Landau-Potential V als Funktion des Ordnungsparameters γ_{kc} für Pumpstärken $\bar{n}_a - \bar{n}_d$ unterhalb des Instabilitätspunktes des Van der Waals-Potentials $\mu(n)$ lt. Figur 2.

treten auf, solange der Koeffizient A im Potential III.38 noch positiv ist. Wie bereits erwähnt, bedeutet dies $\mu^{(1)}(\bar{n}) > 0$. Man findet also im Rahmen der verallgemeinerten Ginzburg-Landau-Theorie schon Tropfenlösungen, bevor die Pumpstärke $\bar{n}$ so hoch ist, daß das Gesamtsystem instabil wird. Dies ist die Konsequenz der nichtlinearen Terme in den hydrodynamischen Gleichungen, die zu den Koeffizienten B und C im Potential V geführt haben.

Zwischen den beiden Potentialminima in Kurve d auf Figur 10 erkennt man eine Potentialbarriere. Diskutieren wir eine Situation, in der das Gesamtsystem der elektronischen Anregungen bei niedrigem $\bar{n}_a$ zunächst homogen in der Gasphase vorlag, so könnte es bei höherer Anregung in eine energetisch günstigere Konfiguration gelangen (das Potentialminimum bei endlichem γ ist tiefer als das bei $\gamma = 0$), wenn die Potentialbarriere überwunden werden könnte.

Dies kann tatsächlich geschehen, da in dem System außer den bisher behandelten Kräften noch statistische Fluktuationskräfte wirken (vgl. Gleichung II.52, II.53). Mit Fluktuationen lautet das hydrodynamische Gleichungssystem III.8

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} + \underline{K}(\Delta_r) \right) \vec{q} = \vec{g}(\vec{q}) + \vec{F}, \quad \text{III.40}$$

wobei der Vektor $\vec{F}$ definiert ist als

$$\vec{F} = \begin{pmatrix} \vec{F}_n \\ \int d\tau (\vec{F}_p \cdot \vec{e}_r) \end{pmatrix}. \quad \text{III.41}$$

(vgl. Gleichungen II.52 und II.53).

Unter Einbeziehung dieser Fluktuationen kann die Ginzburg-Landau-Theorie entsprechend durchgeführt werden^{6,36)} und man erhält letztlich in der Bewegungsgleichung III.39 für den Ordnungsparameter γ_{k_c} einen Zusatzterm:

$$\frac{\partial}{\partial t} \gamma_{k_c} = - \frac{\partial}{\partial \gamma_{k_c}} V + \bar{F}_{eff} \quad \text{III.42}$$

Bei der Berechnung ergibt sich F_{eff} als

$$\bar{F}_{eff} = \bar{F}_{k_c} - \gamma_{k_c} \sum_{\substack{k \\ (k \neq k_c)}} \frac{2 \bar{F}_k}{(\omega(k) + \omega^*(k))} (B^{k_c k k_c} + B^{k_c k_c k}) \quad \text{III.43}$$

mit

$$\bar{F}_k = \int d\mathbf{r} \, r^2 \left(\frac{\tilde{\tilde{Q}}}{2} + \tilde{\tilde{Q}}^* \right) j_0(kr) \bar{\bar{F}}(\mathbf{r}, t)$$

Die statistischen Kräfte F_{eff} sind eine Funktion der Temperatur, wie man sich leicht z.B. anhand der 2. Momente der ursprünglichen Fluktuationen F_β in II.53 klarmachen kann: (Zu den Eigenschaften von Fluktuationskräften vgl. Ref. 24, 33, 38, 39).

Es gilt⁴⁰⁾ für F_β (vgl. Kapitel II.1.6)

$$\left\langle \bar{F}_{\beta,i}(\mathbf{r}, t) \bar{F}_{\beta,j}(\mathbf{r}', t') \right\rangle = 2kT n \beta \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \delta(t - t') \delta_{i,j}.$$

Unter Berücksichtigung der Fluktuationen kann man die Gleichung

III.42 für den Ordnungsparameter interpretieren als Bewegungsgleichung eines überdämpften Teilchens in dem Potential V , das von den statistischen Fluktuationskräften herumgestoßen wird. Das Teilchen hat die größte Aufenthaltswahrscheinlichkeit am jeweiligen Potentialminimum, aber auch das Erreichen von anderen Positionen ist durch die Wirkung der statistischen Kräfte möglich. Die systematischen Kräfte jedoch treiben das Teilchen immer wieder zum Potentialminimum zurück, so daß große Abweichungen von dieser Position unwahrscheinlich sind.

Im Lichte dieser Diskussion stellt die Potentialbarriere in Figur 10 (Seite 60) ein Hindernis für das System dar, in den energetisch günstigeren Zustand (γ endlich) zu gelangen, das mit Hilfe der statistischen Fluktuationskräfte überwunden werden kann. Die Bildung von Elektron-Loch-Tropfen wird somit ermöglicht, obwohl die lineare Analyse noch eine stabile Gasphase voraussagt.

Da die Fluktuationen je nach Höhe der Potentialbarriere und der Temperatur im Mittel eine gewisse Zeit benötigen, bis das Gesamtsystem in den energetisch günstigeren Zustand gelangt, kann man anhand des Potentials in Figur 10 auch die bekannten Hystereseeffekte bei der Elektron-Loch-Tropfennukleation diskutieren: (Zu den Hystereseeffekten vgl. Ref. 8, 41, 42, 43.) Wenn in einem Halbleiterkristall bei hoher Anregungsintensität Tropfen erzeugt werden und man erniedrigt die Pumpstärke, so existieren bei bestimmten Werten noch Tropfen, bei denen noch keine existieren, wenn man von niedriger Anregungsintensität her die Pumpstärke erhöht. In Figur 10.c z.B. ist das relative Minimum bei endlicher Amplitude sicher eher bevölkert, wenn

das System vorher in einem Zustand war, der z.B. durch Figur 10.d beschrieben wird, als wenn es in einem Zustand war, der durch Figur 10.a charakterisiert ist.

In den Figuren 11 und 12 ist schließlich das Potential V für einen größeren Variationsbereich der Pumpstärke dargestellt. Man erkennt wieder, daß bei niedriger Pumpstärke das System homogen in der Gasphase vorliegt (Figur 11.1). Bei etwas höherer Pumpstärke bildet sich das zweite Potentialminimum bei $\gamma \neq 0$, das Tropfenlösungen bedeutet (Figur 11.2). Weiter wachsende Pumpstärke führt dann zu einer Situation, in der die homogene Lösung instabil wird (Figur 11.3). Stattdessen bildet sich ein zweites Minimum bei negativer Amplitude, das immer mehr anwächst (Fig. 11.3, 11.4, 12.5 und 12.6).

Schließlich wird bei höherer Pumpstärke eine Situation erreicht, in der nur noch das Minimum bei negativer Amplitude vorhanden ist (Figur 12.7). In Figur 12.8 ist dann wieder die homogene Lösung ($\gamma = 0$) stabil. Dies entspricht jetzt der Situation, in der der gesamte Kristall homogen mit Elektron-Loch-Flüssigkeit ausgefüllt ist. Die Lösungen mit negativer Amplitude beschreiben inhomogene Bereiche erniedrigter Dichte, d.h. Gasblasen in der Flüssigkeit.

Im Rahmen dieser Diskussion erkennt man, daß die geschilderte Ginzburg-Landau-Theorie in der Lage ist, in der Nähe des kritischen Punktes den gesamten Phasenübergang im System der elektronischen Anregungen von der Gasphase durch das Koexistenzgebiet bis zur Flüssigkeitsphase einheitlich zu beschreiben.

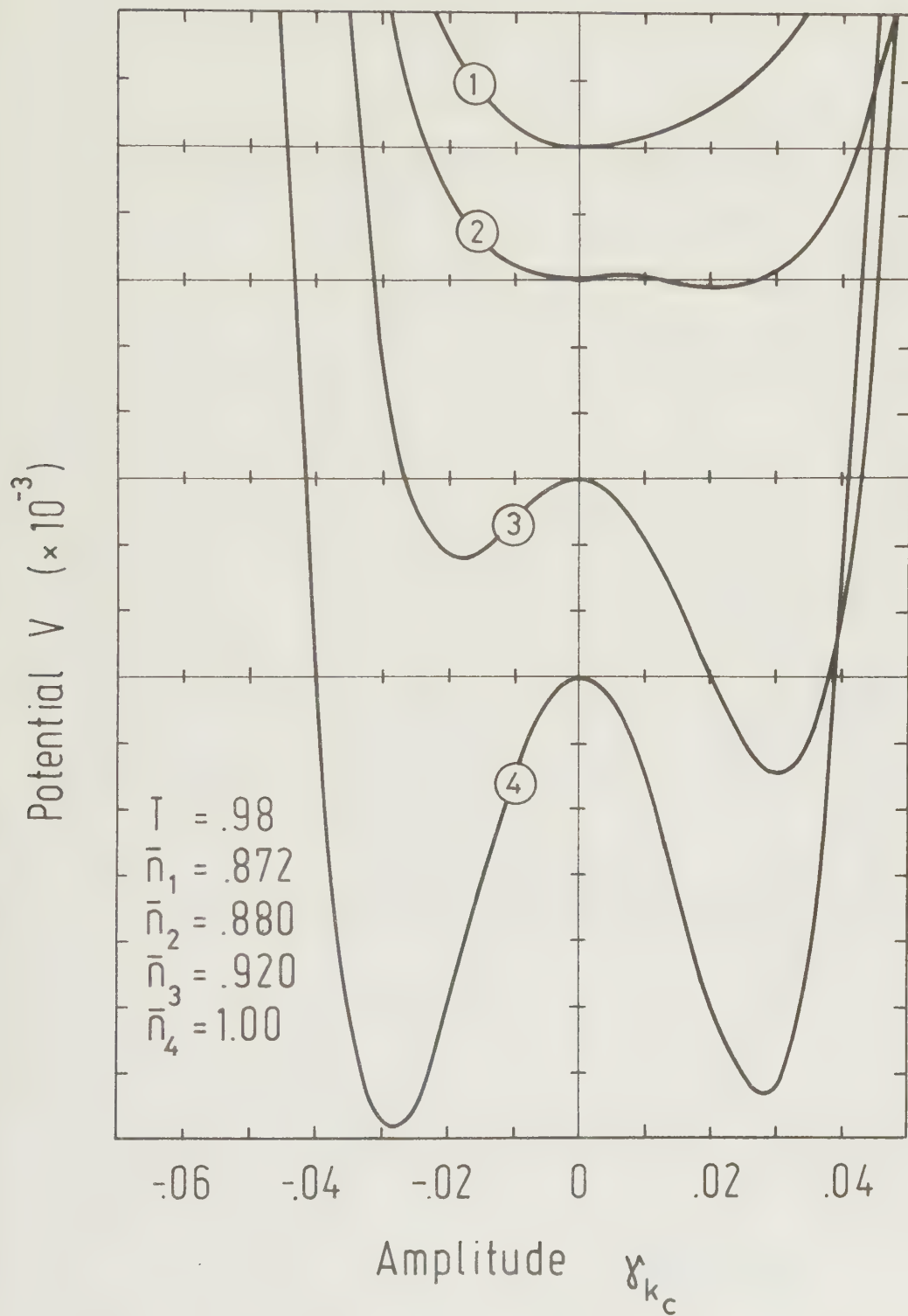


Fig. 11 Ginzburg-Landau-Potential V als Funktion des Ordnungsparameters γ_{kc} für verschiedene Pumpstärken $\bar{n}_1 - \bar{n}_4$.

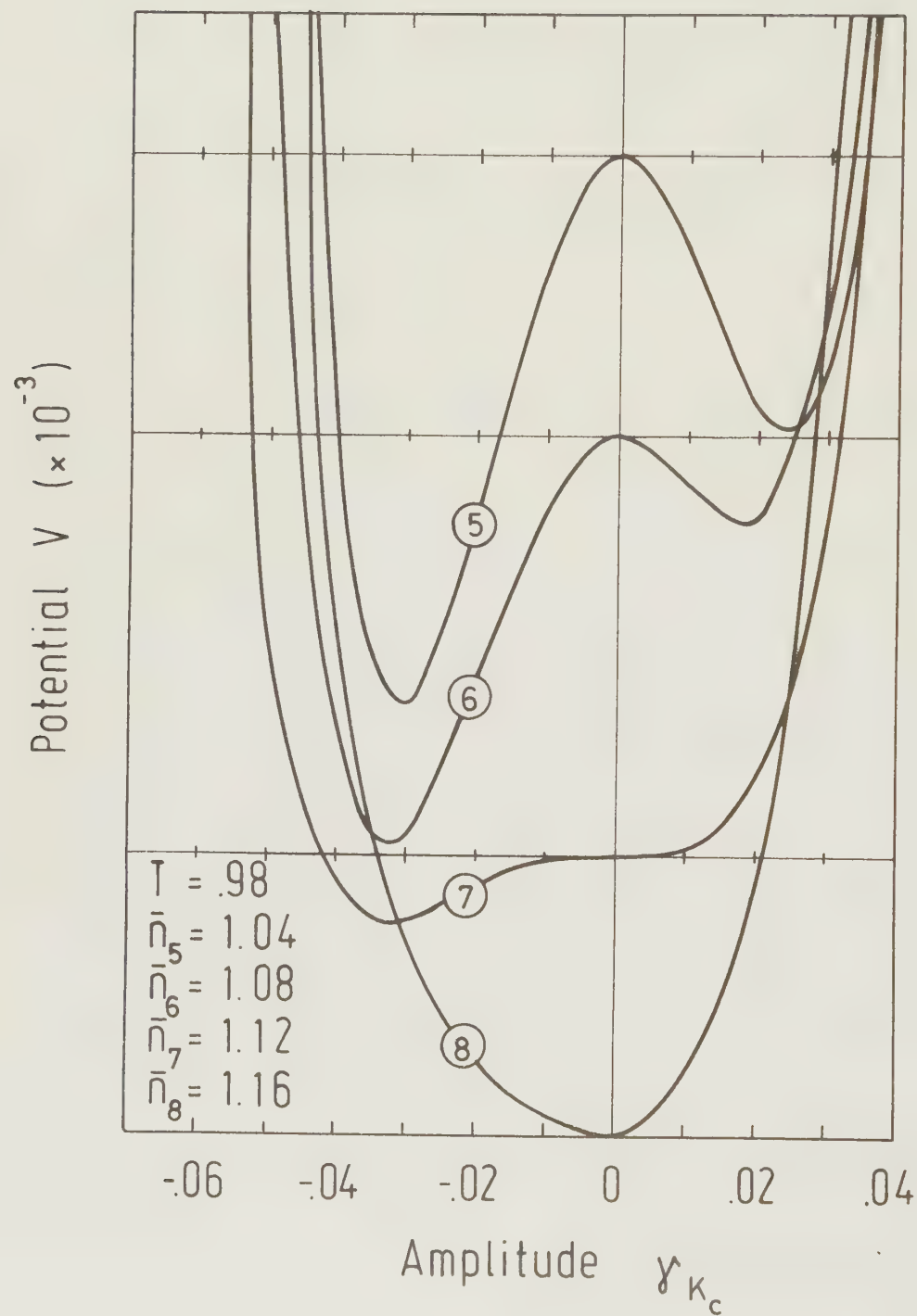


Fig. 12 Ginzburg-Landau-Potential V als Funktion des Ordnungsparameters γ_{K_c} für verschiedene Pumpstärken $\bar{n}_5 - \bar{n}_8$. (Fortsetzung von Figur 11)

IV Kinetik der Elektron-Loch-Tropfennukleation

Die hydrodynamische Beschreibung der Elektron-Loch-Tropfennukleation stellt so, wie sie in der vorliegenden Arbeit beschrieben wurde, eine Kontinuumsapproximation dar, die im wesentlichen lokale Aussagen über das System der elektronischen Anregungen liefert. Wie gezeigt wurde, kann leicht die Größe der Tropfen im Gleichgewicht nebst zugehörigem Geschwindigkeitsprofil berechnet werden. Um das Wachstum der Tropfen zu untersuchen, müßte man zeitabhängige Lösungen der hydrodynamischen Gleichungen berechnen. Dafür wären jedoch gekoppelte, nichtlineare, partielle Differentialgleichungen zu lösen, was sehr aufwendig erscheint. Außerdem ist ungeklärt, wie man die lokale Beschreibung eines Tropfens mit der globalen Energieerhaltung, die die Zahl der Elektron-Loch-Tropfen bestimmt, verbinden muß.

Langer^{20,44)} hat gezeigt, wie man bei Flüssigkeiten unendlicher Lebensdauer die Zahl der gebildeten Tropfen aus den hydrodynamischen Gleichungen berechnen kann. Sein Zugang basiert auf der Möglichkeit einer kanonischen Formulierung der Hydrodynamik (vgl. Kapitel II.1 der vorliegenden Arbeit). Von der Kontinuitäts- und der Navier-Stokes-Gleichung als reversiblen Bewegungsgleichungen ausgehend diskutiert Langer die dazu äquivalente Liouville-Gleichung. Diese erweitert er durch Hinzufügen von dissipativen Termen (aufgrund endlicher Zähigkeit und Wärmeleitfähigkeit der Flüssigkeit) zu einer funktionalen Fokker-Planck-Gleichung. Mittels dieser Fokker-Planck-Gleichung berechnet er den integrierten Wahrscheinlichkeitsstrom und erhält so eine Aussage über die Rate der gebildeten Tropfen.

Versucht man, diese Behandlungsmethode auf Flüssigkeiten endlicher Lebensdauer zu erweitern, so stößt man bei den dabei auftretenden Funktionalintegralen auf erhebliche Konvergenzprobleme. Überhaupt sind die Berechnungen von Langer äußerst aufwendig und trotzdem sind noch viele Approximationen nötig, so daß es nicht angebracht erscheint, diese Rechnungen für Flüssigkeiten endlicher Lebensdauer nachzuvollziehen.

Ein alternativer Zugang, der auf die klassische homogene Nukleationstheorie zurückgreift, hat sich dagegen als sehr erfolgreich bei der Erklärung der Elektron-Loch-Tropfen-nukleation erwiesen (vgl. Ref. 7, 8, 9, 10).

IV.1 Erinnerung an die klassische Nukleationstheorie

Die klassische Nukleationstheorie basiert wesentlich auf einer sehr frühen Arbeit von Becker und Döring¹⁾. Hier und in späteren Arbeiten (vgl. als Zusammenfassungen Ref. 2, 3) betrachtet man als Modell einen Dampf aus Molekülen (Monomere), in dem sich Cluster verschiedener Größe A_n befinden. (Der Index n kennzeichnet die Zahl der Moleküle im jeweiligen Cluster.) Es wird angenommen, daß sich so wenige Cluster in dem Dampf befinden, daß die Wechselwirkung zwischen ihnen vernachlässigbar ist. Dann kann ein Cluster mit n Molekülen nur auf zwei Arten entstehen:

1. indem ein Cluster mit $n - 1$ Teilchen ein Teilchen hinzugewinnt



2. indem ein Cluster mit $n + 1$ Teilchen ein Teilchen verliert



Bezeichnet man mit f_n die Konzentration von Clustern A_n , dann kann man ansetzen

$$\frac{\partial f_n}{\partial t} = J_{n-1} - J_n, \quad \text{IV.1}$$

wobei

$$J_n = g_n f_n - l_{n+1} f_{n+1}. \quad \text{IV.2}$$

Hier ist g_n die Gewinnrate, d.h. die Rate mit der Moleküle auf einen Cluster kondensieren. l_n ist die Verlustrate, also die Rate mit der Moleküle aus einem Cluster A_n verdampfen. J_n kann als Strom aufgefaßt werden, der die Cluster verschiedener Größe verbindet.

Gleichung IV.1 wird im wesentlichen in zwei Fällen behandelt, für die jeweils $\frac{\partial f_n}{\partial t} = 0$ gilt. Dies ist 1. der stationäre Zustand. Hier gilt

$$J_n = J > 0, \quad \forall n. \quad \text{IV.3}$$

2. $\frac{\partial f_n}{\partial t} = 0$ ist auch noch im Gleichgewicht erfüllt. Der Gleichgewichtszustand ist definiert durch

$$J_n = 0, \quad \forall n. \quad \text{IV.4}$$

Bezeichnet man die Gleichgewichtskonzentration als h_n

$$f_n^{\text{Gleichgewicht}} = h_n, \quad \text{IV.5}$$

dann folgt aus IV.4

$$l_{n+1} h_{n+1} = g_n h_n. \quad \text{IV.6}$$

Die Gewinnrate g_n kann (für große Cluster) leicht berechnet werden. Sie ist proportional zu der Clusteroberfläche ($\propto n^{2/3}$), zu der Teilchenzahl im Dampf (h_1) und zu der Geschwindigkeit der Dampfmoleküle ($\propto \left(\frac{kT}{m}\right)^{1/2}$, thermische Geschwindigkeit).

Man erhält

$$g_n = n^{2/3} h_1 b(T). \quad \text{IV.7}$$

Hierbei ist $b(T)$ eine reine Funktion der Temperatur ($\propto T^{1/2}$).

Für die Verlustrate gilt lt. IV.6

$$l_n = \frac{h_{n-1}}{h_n} g_{n-1}. \quad \text{IV.8}$$

Bei der Behandlung des stationären Zustandes macht man zwei wesentliche Annahmen:

1. Für kleine Cluster A_g , $g \lesssim 10$ sei die Konzentration im stationären Zustand gleich der Gleichgewichtskonzentration

$$f_g^{\text{stationär}} \equiv f_g^s = h_g. \quad \text{IV.9}$$

Dies ist wegen der Vielzahl dieser kleinen Cluster eine recht gute Näherung.

2. Jeder Cluster, der eine bestimmte Größe G erreicht, soll aus dem System entfernt werden. Die absolute Wahl von G ist für die späteren Ergebnisse unwichtig, nötig ist nur, daß G größer als eine noch zu bestimmende Größe n_c ist. Man wählt z.B.

$$G = 2 n_c . \quad \text{IV.10}$$

Damit bedeutet die Annahme 2

$$f_G^s = 0 . \quad \text{IV.11}$$

Mit dieser Annahme will man verhindern, daß das gesamte System auf einen einzigen großen Tropfen kollabiert. Experimentell kann man diese Annahme realisieren, wenn man z.B. in Nebelkammerexperimenten die größeren Tropfen aufgrund der Schwerkraft nach unten absinken läßt und sie dann aus dem System entfernt.

Setzt man nun die Verlustrate lt. Gleichung IV.8 in Gleichung IV.3 ein, so erhält man

$$\frac{J}{g_n h_n} = \frac{f_n^s}{h_n} - \frac{f_{n+1}^s}{h_{n+1}} \quad \text{IV.12}$$

Diese Gleichung summiert man über n von $n = g$ bis $n = G - 1$, verwendet die Näherungen IV.9 und IV.10 und löst nach J auf.

Es resultiert

$$J = \left[\sum_{n=g}^{G-1} \frac{1}{g_n h_n} \right]^{-1} \approx \left[\int_g^{G-1} dn \frac{1}{g_n h_n} \right]^{-1} . \quad \text{IV.13}$$

Dies ist das zentrale Resultat der klassischen oder Becker-Döring-Nukleationstheorie. Um den Nukleationsstrom J explizit zu berechnen, benötigt man noch einen Ausdruck für h_n . Diesen gewinnt man als Resultat thermodynamischer Berechnungen (vgl. z.B. Ref. 45) als

$$h_n = h_1 \exp \left(- \frac{\Delta G_n}{k T} \right) . \quad \text{IV.14}$$

Hierbei gilt

$$\Delta G_n = \sigma n^{2/3} a_0 - n k T \ln S . \quad \text{IV.15}$$

(σ = Oberflächenenergie des Tropfens, S = Übersättigung des Dampfes, a_0 = Oberfläche pro Oberflächenmolekül)

Die Übersättigung S wird in der klassischen Nukleationstheorie definiert als Quotient aus aktuellem Druck im Dampf und Druck des Dampfes bei Koexistenz mit einer unendlich ausgedehnten Flüssigkeit (Dampfdruck). ΔG_n ist die freie Enthalpiedifferenz, die auftritt, sobald in einem übersättigten Dampf ein Tropfen mit n Molekülen gebildet wird. Der erste Term in Gleichung IV.15 ist ein Ausdruck für die Energieerhöhung dadurch, daß sich in dem vorher homogenen System eine Oberfläche ausgebildet hat ($\propto n^{2/3}$). Der zweite Term ist der Energiegewinn durch die Kondensation eines Teils des Dampfes ($\propto n$).

ΔG_n ist in Figur 13 schematisch aufgetragen (vgl. Ref. 3).

Für $S > 1$ hat ΔG_n ein wohldefiniertes Maximum bei

$$n_c = \left(\frac{2}{3} \frac{\sigma a_0}{k T \ln S} \right)^3 . \quad \text{IV.16}$$

Diese Beziehung ist in der Nukleationstheorie unter dem Namen

Kelvin-Relation bekannt. In Figur 13 erkennt man, daß die Präsenz eines Tropfens mit $n < n_c$ Molekülen eine Energieerhöhung für das System bedeutet. Dieser Tropfen wird die Tendenz haben, wieder zu verdampfen. Entsteht hingegen aufgrund einer Fluktuation ein Tropfen mit $n > n_c$ Molekülen, so kann dieser Tropfen wachsen und die Gesamtenergie wird erniedrigt. Das System hat den größtmöglichen Energiegewinn, wenn dieser Tropfen unbegrenzt wächst, wenn also das gesamte System in die flüssige Phase kondensiert. ΔG_{n_c} wird deshalb oft als Energiebarriere zur Nukleation bezeichnet. n_c ist die kritische Tropfengröße. Sie ist lt. Gleichung IV.16 $\propto T^{-3}$ und $\propto (\ln S)^{-3}$, d.h. je größer Temperatur und Übersättigung sind, desto kleiner ist die kritische Tropfengröße.

Im Lichte dieser Diskussion ist die Annahme 2 (Gleichung IV.11) zu sehen. Es wäre unmöglich, einen stationären Zustand aufrecht zu erhalten, wenn das System mit dem ersten Tropfen, der die Energiebarriere überwunden hat (also $n > n_c$ Moleküle hat), total in die flüssige Phase kollabieren würde. Setzt man nun Gleichung IV.14 in IV.13 ein, so kann man den Nukleationsstrom berechnen als

$$J \propto \frac{S}{kT} \sigma^{1/2} \cdot \exp \left(- \frac{4\pi G R_c^2}{3kT} \right) , \quad \text{IV.17}$$

wobei $n = \frac{4}{3} \pi \frac{R^3}{V}$ (V = Volumen pro Molekül) verwendet wurde. Dieses Ergebnis (IV.17) liefert sehr gute Übereinstimmung mit Nebelkammerexperimenten z.B. für die Kondensation von Wassertropfen (vgl. Ref. 3).

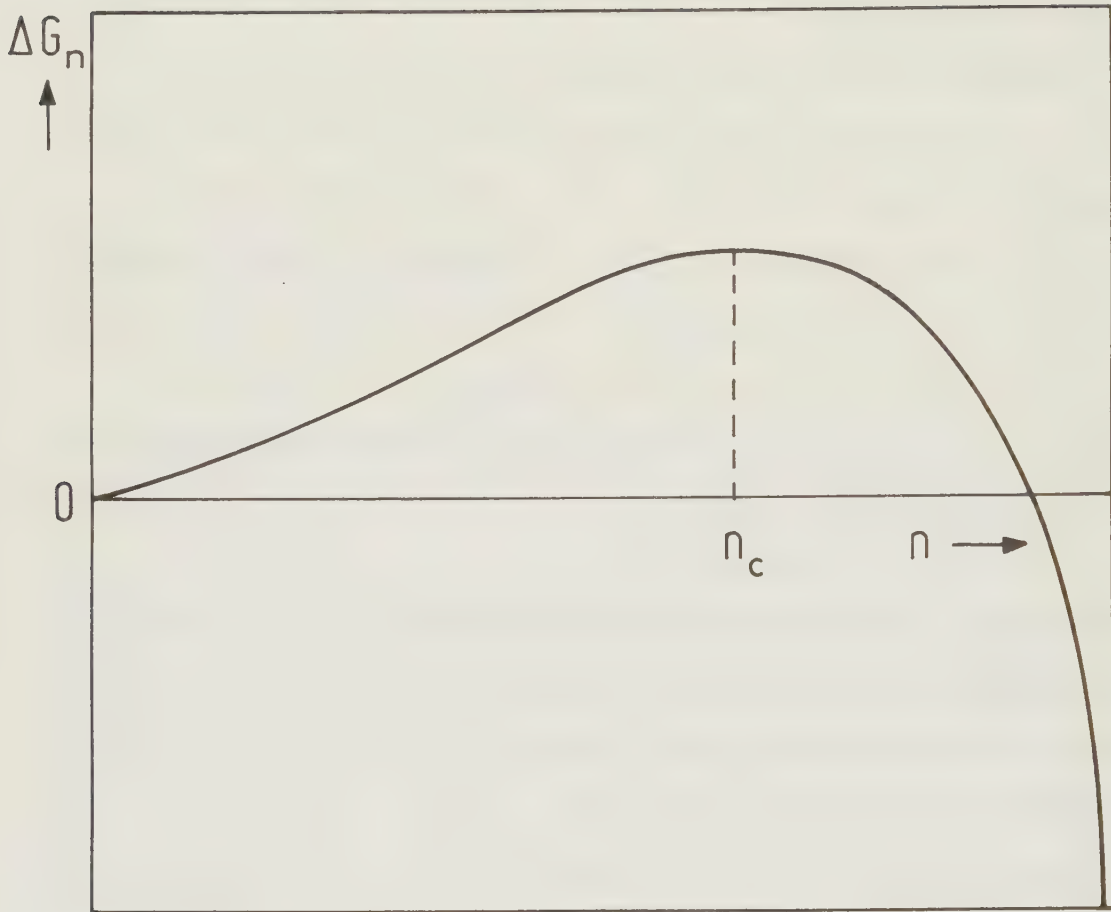


Fig. 13 Freie Enthalpiedifferenz ΔG_n für einen Tropfen mit n Molekülen (einer klassischen Flüssigkeit) im übersättigten Dampf. (Schematische Darstellung)

IV.2 Nukleationskinetik der Flüssigkeiten endlicher Lebensdauer

Die klassische Nukleationstheorie läßt sich leicht für die Behandlung von Flüssigkeiten endlicher Lebensdauer (Elektron-Loch-Flüssigkeit) erweitern⁷⁻⁹⁾. Rein formal gilt auch hier die Mastergleichung IV.1 mit dem Ausdruck für den Strom IV.2:

$$\frac{\partial f_n}{\partial t} = l_{n+1} f_{n+1} + g_{n-1} f_{n-1} - (l_n + g_n) f_n . \quad \text{IV.18}$$

Die Verlustrate l_n eines Clusters mit n Elektron-Loch-Paaren unterscheidet sich jedoch um einen Zusatzterm von der Verlustrate eines Clusters mit z.B. n Wassermolekülen. Dieser Zusatzterm l_n^R tritt auf wegen der endlichen Lebensdauer $\tau(n)$ der Elektron-Loch-Paare. Er ist proportional zur Zahl der Elektron-Loch-Paare im Tropfen. Es gilt

$$\begin{aligned} l_n &= l_n^R + l_n^V \\ \text{mit} \quad l_n^R &= \frac{n}{\tau(n)} , \quad l_n^V = a(n) n^{2/3} , \end{aligned} \quad \text{IV.19}$$

wobei $a(n)$ die Verdampfungsrate lt. Richardson-Dushman (vgl. Ref. 40) ist und später explizit angegeben wird.

Die Gewinnrate g_n ist formal identisch mit dem Ausdruck IV.7 der klassischen Nukleationstheorie. Statt Moleküldichte im Dampf h_1 muß bei der Elektron-Loch-Tropfennukleation jedoch die Exzitonendichte n_x in der Gasphase stehen:

$$g_n = n^{2/3} n_x b(T) . \quad \text{IV.20}$$

Die endliche Lebensdauer der Elektron-Loch-Paare führt zu einem Zusatzterm in der freien Enthalpiedifferenz lt. Gleichung IV.15. Freie Enthalpiedifferenz plus Zusatzterm wird im weiteren einfach als Potential $\Psi(n, n_x)$ bezeichnet. Die explizite Form dieses Potentials kann man leicht berechnen⁸⁾:

Bei unendlicher Lebensdauer gilt im Gleichgewicht (IV.14)

$$g_n h_n = l_{n+1}^v h_{n+1} \quad \text{IV.21}$$

mit der Lösung

$$h_n = h_1 \exp(-\Delta G_n / kT) . \quad \text{IV.22}$$

Berücksichtigt man nun in IV.21 die Verluste aufgrund endlicher Lebensdauer, so gilt ($\bar{f}_n$ = Gleichgewichtsverteilung mit endlicher Lebensdauer)

$$g_n \bar{f}_n = (l_{n+1}^v + l_{n+1}^R) \bar{f}_{n+1} \quad \text{IV.23}$$

mit l_n^v (Verdampfungsverlust) und l_n^R (Rekombinationsverlust) lt. Gleichung IV.19. Aus Gleichung IV.23 folgt

$$\frac{\bar{f}_{n+1}}{\bar{f}_n} = \frac{g_n / l_{n+1}^v}{1 + l_{n+1}^R / l_{n+1}^v} = \frac{h_{n+1} / h_n}{1 + t_{n+1}} , \quad \text{IV.24}$$

wobei Gleichung IV.21 verwendet wurde und der kürzeren Notation wegen

$$t_n = \frac{l_n^R}{l_n^V} \quad \text{IV.25}$$

Bezeichnet man weiterhin den Quotienten $\bar{f}_n / h_n$ als c_n

$$c_n = \frac{\bar{f}_n}{h_n} \quad \text{IV.26}$$

so kann man Gleichung IV.24 einfach schreiben als

$$\frac{c_{n+1}}{c_n} = \frac{1}{1 + t_{n+1}}$$

Mit der Randbedingung $\bar{f}_1 = h_1$ kann man die Gleichung durch Iteration lösen. Man erhält

$$c_n = \prod_{m=2}^n \frac{1}{1 + t_m}$$

bzw. mit IV.26

$$\bar{f}_n = h_n e^{\left(\ln \prod_{m=2}^n \frac{1}{1 + t_m} \right)} = h_n e^{-\sum_{m=2}^n \ln(1 + t_m)}$$

Setzt man hier nun die explizite Form von h_n (Gl. IV.22) und t_m (IV.25) mit l_n^R und l_n^V lt. IV.19 ein, so kann man das Potential $\Psi(n, n_x)$ ablesen.

Es gilt

$$\bar{f}_n = h_1 e^{-\Psi(n, n_x)/kT} \quad \text{IV.27}$$

mit

$$\Psi(n, n_x) = \sigma n^{2/3} \alpha_0 - n k T \ln S + k T \sum_{m=2}^n \ln \left(1 + \frac{m^{1/3}}{\tau(m) \alpha(m)} \right).$$

Die Übersättigung S ist im System der elektronischen Anregungen definiert als

$$S = \frac{n_x}{n_s}, \quad \text{IV.28}$$

wobei n_s die klassische Sättigungsdichte ist (vgl. Ref. 7,8):

$$n_s = \gamma \left(\frac{m k T}{2 \pi \hbar^2} \right)^{3/2} e^{-\beta \phi} \quad \text{IV.29}$$

Hierbei ist γ die Entartung des Exzitonengrundzustandes und ϕ ist die Austrittsarbeit aus der Elektron-Loch-Flüssigkeit in den Dampf.

Weiterhin gilt^{7,8)}

$$\alpha(n) = c T^2 e^{-\beta \left[\phi - \frac{2}{n_0^{2/3}} \left(\frac{4 \pi}{3 n} \right)^{1/3} \sigma \right]} \quad \text{IV.30}$$

Dies ist die Richardson-Dushman-Verdampfungsrate. Die Austrittsarbeit ϕ wurde durch die Oberflächenspannung σ des Tropfens modifiziert. n_0 ist die Flüssigkeitsdichte der Elektron-Loch-Flüssigkeit. Sie wird experimentell gemessen. (Aus einem realistischen Ausdruck für das chemische Potential des Systems der elektronischen Anregungen wäre n_0 mittels der Maxwell-Konstruktion bestimmbar.)

Anhand des Potentials $\Psi(n, n_x)$ lt. Gleichung IV.27 kann man gut die wesentliche Konsequenz der endlichen Lebensdauer für die Tropfennukleation diskutieren. In Figur 14 wurde das Poten-

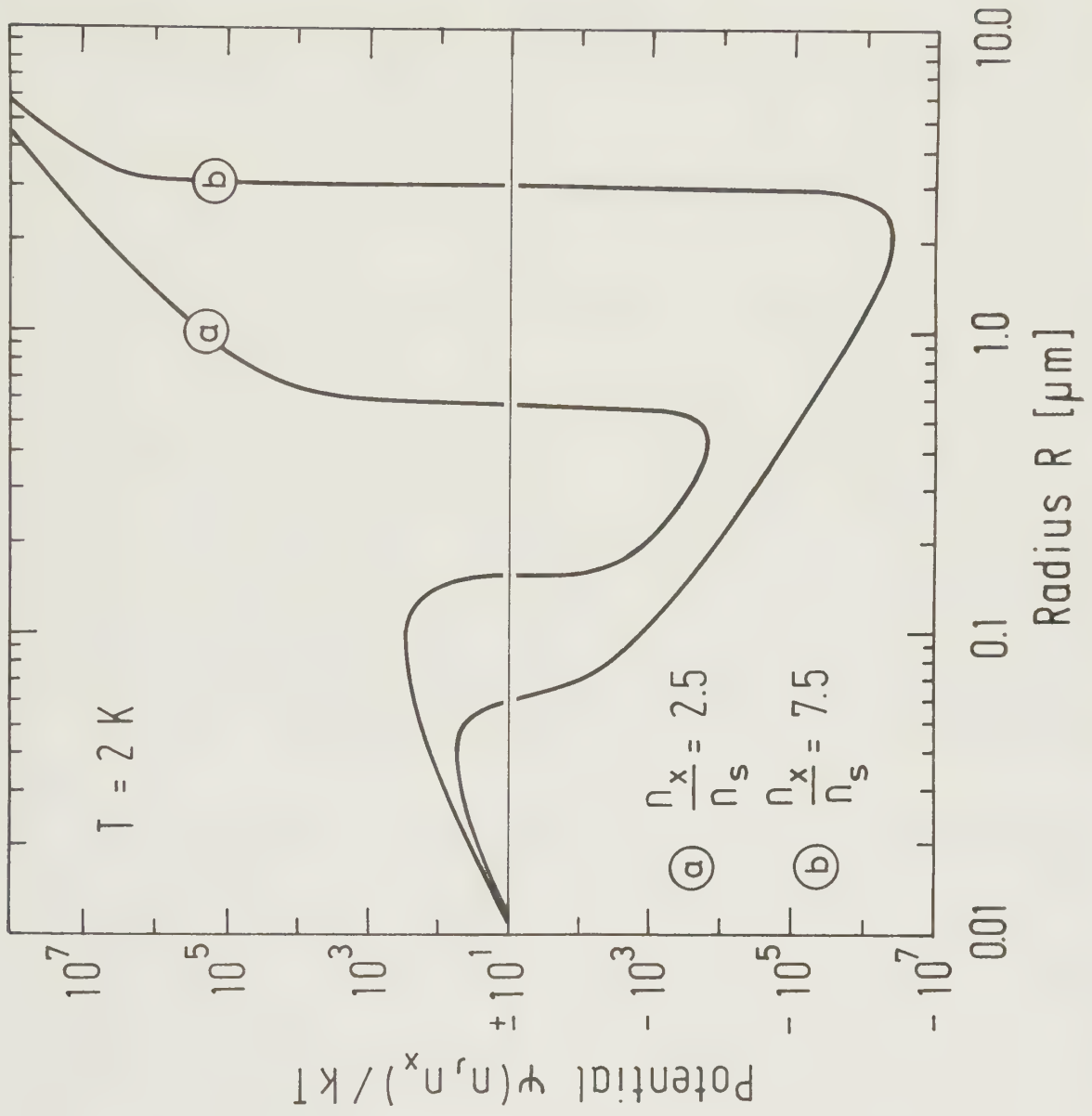


Fig. 14 Potential ψ als Funktion des Tropfenradius für Germanium bei zwei Übersättigungen n_x/n_s (lt. Gl. IV.27).

tial gegen den Tropfenradius R für zwei Werte der Übersättigung n_x/n_s unter Verwendung der in Anhang A.2 angegebenen Materialparameter für Germanium aufgetragen.

Der Radius R und die Teilchenzahl n im Tropfen sind bei den angenommenen kugelförmigen Tropfen direkt ineinander umrechenbar

$$n = \frac{4}{3} \pi R^3 n_0 \quad . \quad \text{IV.31}$$

Man erkennt in Figur 14, daß für kleine Radien kein qualitativer Unterschied zu Figur 13 besteht. (Figur 13: freie Enthalpiedifferenz für einen klassischen Tropfen im Dampf.) Man kann also auch bei Flüssigkeiten endlicher Lebensdauer einen kritischen Tropfenradius R_c (entspricht kritischer Teilchenzahl im Tropfen n_c) definieren. Das Potential hat an dieser Stelle ein Maximum und kann, genau wie im klassischen Fall, als Barriere zur Tropfennukleation verstanden werden.

Die Konsequenz der endlichen Lebensdauer der Elektron-Loch-Paare für das Potential $\Psi(n, n_x)$ ist in Figur 14 für große Tropfenradien ersichtlich. Das Potential steigt hier wieder steil an. Es wird so für das System energetisch sehr ungünstig, beliebig große Tropfen zu bilden, oder gar (bei den angegebenen Übersättigungen) vollständig in die flüssige Phase zu kollabieren. Stattdessen hat das Potential ein wohl ausgebildetes Minimum. Dieses Minimum charakterisiert eine stabile Tropfengröße. Bildung von Elektron-Loch-Tropfen dieser Größe bedeutet eine maximale Energieerniedrigung für das Gesamtsystem der elektronischen Anregungen. Das Profil dieser stabilen Tropfen wurde auch im Rahmen der hydrodynamischen Analyse (Kap. II der vorliegenden Arbeit) berechnet.

IV.3 Zusammenhang zwischen hydrodynamischer und kinetischer Beschreibung der Elektron-Loch-Tropfennukleation

An dieser Stelle erscheint es sinnvoll, den Zusammenhang zwischen der hydrodynamischen Beschreibung (Kapitel II) und der kinetischen Beschreibung (Kapitel IV) der Elektron-Loch-Tropfennukleation näher zu untersuchen⁴⁸⁾. In dem vorliegenden Abschnitt soll gezeigt werden, wie man beide Beschreibungen auf die gleiche Fokker-Planck-Gleichung für die Wahrscheinlichkeitsverteilung von Elektron-Loch-Tropfen reduzieren kann.

Beginnen wir der Einfachheit halber mit der kinetischen Beschreibung. Hier ist die, aufgrund reaktionskinetischer Überlegungen gewonnene Mastergleichung (IV.18) der Ausgangspunkt der weiteren Berechnungen. Diese Mastergleichung kann man leicht mit Hilfe der berechneten Gleichgewichtsverteilung (Gl. IV.27) durch eine Fokker-Planck-Gleichung approximieren.

Es gilt^{2,7,14)}

$$\frac{\partial f_n}{\partial t} = l_{n+1} f_{n+1} - g_n f_n - l_n f_n + g_{n-1} f_{n-1}$$

IV.32

$$= g_n \bar{f}_n \left(\frac{f_{n+1}}{\bar{f}_{n+1}} - \frac{f_n}{\bar{f}_n} \right) - g_{n-1} \bar{f}_{n-1} \left(\frac{f_n}{\bar{f}_n} - \frac{f_{n-1}}{\bar{f}_{n-1}} \right),$$

wobei lediglich die Definition (IV.23) der Gleichgewichtsverteilung $\bar{f}_n$ verwendet wurde. Approximiert man den Differenzenquotienten in IV.32 durch einen Differentialquotienten nach dem Prinzip ($\Delta n = 1$)

$$\frac{\partial^2}{\partial n^2} f_n = (f_{n+1} - f_n) - (f_n - f_{n-1}) ,$$

so erhält man die Fokker-Planck-Gleichung

$$\frac{\partial}{\partial t} f_n = - \frac{\partial}{\partial n} J_n \quad \text{IV.33}$$

mit dem Wahrscheinlichkeitsstrom

$$J_n = -g_n \bar{f}_n \frac{\partial}{\partial n} \frac{f_n}{\bar{f}_n} = -g_n \left(\frac{\partial f_n}{\partial n} - f_n \frac{\partial}{\partial n} \ln \bar{f}_n \right) . \quad \text{IV.34}$$

Eine völlig äquivalente Fokker-Planck-Gleichung kann man auch aus der hydrodynamischen Beschreibung der Elektron-Loch-Tropfennukleation gewinnen. Dazu geht man aus von der Kontinuitätsgleichung II.52 für die Teilchendichte $\underline{s}/m$ ($\underline{s}$ = Massendichte, m = effektive Masse eines Elektron-Loch-Paares)

$$\frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{\underline{s}}{m} \right) = - \vec{\nabla} \left(\frac{\underline{s}}{m} \vec{u} \right) + \left(\frac{\bar{\underline{s}}}{m} - \frac{\underline{s}}{m} \right) \frac{1}{\tau} + \frac{F_s}{m}$$

und integriert diese Gleichung über das Tropfenvolumen V . Das Integral $\int_V d^3r \frac{\underline{s}}{m} = n$ liefert gerade die Teilchenzahl im Tropfen.

Damit erhält man

$$\frac{\partial n}{\partial t} = - \frac{n}{\tau} + \frac{\bar{\underline{s}} V}{m \tau} - \int_V d^3r \vec{\nabla} \left(\frac{\underline{s}}{m} \vec{u} \right) + F_n . \quad \text{IV.35}$$

Der Term $\frac{\bar{\underline{s}} V}{m \tau}$ ist die Pumprate direkt in den Tropfen. Diese kann wegen der geringen Tropfengröße vernachlässigt werden.

Der Term $\int_V d^3r \vec{\nabla} \left(\frac{\rho}{m} \vec{u} \right)$ kann mit dem Gauß'schen Satz umgeformt werden, er liefert gerade den Gesamtstrom durch die Tropfenoberfläche:

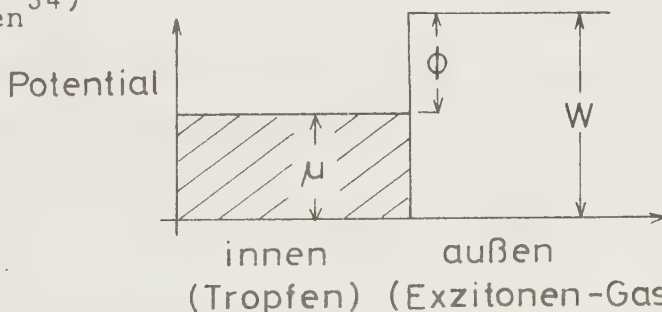
$$\int_V d^3r \vec{\nabla} \left(\frac{\rho}{m} \vec{u} \right) = \int_{O(V)} \left(\frac{\rho}{m} \vec{u} \right) \cdot d\vec{F}$$

Dieser Gesamtstrom müßte im Prinzip aus der Navier-Stokes-Gleichung berechnet werden. Wesentlich einfacher ist es jedoch, den Strom durch die Oberfläche als Differenz zwischen dem Strom in den Tropfen hinein (j_{rein}) und dem Strom aus dem Tropfen hinaus (j_{raus}) mit der Boltzmann-Gleichung auszurechnen.

Der Term $\int_{O(V)} \left(\frac{\rho}{m} \vec{u} \right) \cdot d\vec{F}$ ist dann gegeben durch das Produkt aus Tropfenoberfläche und der Stromdifferenz ($j_{\text{raus}} - j_{\text{rein}}$).

Die Ströme j_{rein} und j_{raus} kann man leicht berechnen, wenn man annimmt, daß innerhalb des Tropfens ein entartetes Fermigas vorliegt und daß die Exzitonen außerhalb des Tropfens als Boltzmann-Gas behandelt werden können. $\left(\vec{j} = \int \frac{d^3p}{m(2\pi\hbar)^3} \vec{p} \cdot f(p) \right)$

Den Potentialverlauf für dieses Modell kann man schematisch skizzieren⁵⁴⁾



Hierbei ist μ das chemische Potential und ϕ ist die Austrittsarbeit. Diese Austrittsarbeit setzt sich zusammen aus der Austrittsarbeit bei ebener Oberfläche ϕ und einem Korrekturterm durch die Oberflächenspannung σ des Tropfens. Der Einfachheit

halber berechnen wir im folgenden die Ströme j_{rein} und j_{raus} für den Fall einer ebenen Oberfläche:

Aus dem Tropfen können nur die Teilchen gelangen, die die Potentialschwelle an der Oberfläche überwinden können⁵⁴⁾. Der Anteil der kinetischen Energie, der von der Bewegung senkrecht zur Wand herrührt, muß größer als W sein.

Sei z.B. die x -Achse parallel zur Oberflächennormalen, so muß gelten

$$\frac{p_x^2}{2m} > W.$$

Definiert man einen Mindestimpuls als

$$p_{x,\min} = (2mW)^{1/2},$$

dann erhält man die Stromdichte (Teilchen pro Fläche und Sekunde) aus dem Tropfeninneren durch die Oberfläche als

$$j_{\text{raus}} = \frac{2}{(2\pi\hbar)^3 m} \int_{-\infty}^{\infty} dp_y \int_{-\infty}^{\infty} dp_z \int_{p_{x,\min}}^{\infty} dp_x \left(e^{\beta \left(\frac{p_x^2 + p_y^2 + p_z^2}{2m} - \mu \right)} + 1 \right)^{-1} p_x.$$

Für die Integration bezüglich p_y und p_z transformiert man auf ebene Polarkoordinaten. Mit der Bezeichnung $\frac{\beta}{2m} (p_y^2 + p_z^2) = b_1$ und der Substitution $\beta \left(\frac{p_x^2}{2m} - W \right) = b_2$ erhält man

$$j_{\text{raus}} = \frac{\pi}{m(2\pi\hbar)^3} \left(\frac{2m}{\beta} \right)^2 \int_0^{\infty} db_1 \int_0^{\infty} db_2 \left(e^{\beta(W-\mu) + b_1 + b_2} + 1 \right)^{-1}.$$

Für $\beta(W-\mu) = \beta\phi \gg 1$ kann man die 1 im Integranden gegenüber der Exponentialfunktion vernachlässigen und das Integral

leicht ausrechnen. Es resultiert

$$j_{\text{raus}} = \frac{4\pi m}{(2\pi\hbar)^3} k^2 T^2 e^{-\beta\phi}.$$

Dies ist die bekannte Richardson-Dushman-Verdampfungsrate⁵⁴⁾.

Um den Strom in den Tropfen hinein zu berechnen, behandelt man das den Tropfen umgebende Exzitonengas als klassisches Boltzmann-Gas mit der Verteilungsfunktion

$$f(p) = c e^{-\beta \frac{p^2}{2m}}.$$

Den Strom j_{rein} erhält man aus der Gleichung

$$j_{\text{rein}} = \int \frac{d^3 p}{m(2\pi\hbar)^3} p_x f(p)$$

als Produkt aus Teilchendichte n_x im Gas und mittlerer thermischer Geschwindigkeit ($v_x \propto \sqrt{kT}$) der Teilchen.

Faßt man zusammen und berücksichtigt, daß die Austrittsarbeit ϕ bei kugelförmigen Tropfen durch die Oberflächenspannung σ lt. Gleichung IV.30 modifiziert wird, so kann man schreiben (Die Oberfläche ist proportional zur Teilchenzahl hoch $2/3$ ($n^{2/3}$) (lt. Gl. IV.31)):

$$\int_{O(V)} \left(\frac{\sigma}{m} \vec{u} \right) d\vec{F} = l_n^V - g_n$$

mit l_n^V lt. Gleichung IV.19 und g_n lt. Gleichung IV.20.

Die Integration der Kontinuitätsgleichung über das Tropfenvolumen führt somit zur Langevin-Gleichung für die Teilchenzahl

in einem Tropfen (vgl. Ref. 7 - 10 und Ref. 46)

$$\frac{\partial n}{\partial t} = g_n - l_n + F_n \quad \text{IV.36}$$

Von dieser Langevin-Gleichung kann man mittels der Standardtechnik (vgl. Ref. 6) zur äquivalenten Fokker-Planck-Gleichung übergehen. Zu diesem Zweck muß man die zweiten Momente der Fluktuation kennen. Da es sich bei der Fluktuationen F_n in Gleichung IV.36 um Schwankungen in der Teilchenzahl handelt, ist der eigentliche Ursprung dieser Fluktuationen quantenmechanischer Natur. Die zweiten Momente von Teilchenzahlfluktuationen beschreiben sogenanntes 'Schrotrauschen' und sind berechenbar als Summe aus Gewinn- und Verlustrate (vgl. Ref. 47).

Es gilt

$$\langle F_n(t) F_n(t') \rangle = Q_n \delta(t - t') \quad \text{IV.37}$$

wobei Q_n im vorliegenden Fall gegeben ist durch

$$Q_n = g_n + l_n$$

Die zur Langevin-Gleichung IV.36 äquivalente Fokker-Planck-Gleichung für die Wahrscheinlichkeitsverteilung von Elektronenloch-Tropfen erhält man damit als

$$\frac{\partial f_n}{\partial t} = - \frac{\partial}{\partial n} \tilde{J}_n \quad \text{IV.38}$$

mit dem Wahrscheinlichkeitsstrom

$$\tilde{J}_n = f_n \left(g_n - l_n - \frac{1}{2} \frac{\partial Q_n}{\partial n} \right) - \frac{1}{2} Q_n \frac{\partial f_n}{\partial n} \quad \text{IV.39}$$

Dieser Ausdruck für den Wahrscheinlichkeitsstrom wird formal identisch mit dem Wahrscheinlichkeitsstrom $\tilde{J}_n$, der aus den kinetischen Gleichungen berechnet wurde (Gl. IV.34), wenn

$$Q_n \approx 2 g_n \quad \text{IV.40}$$

und

$$\frac{\partial}{\partial n} (\ln \bar{f}_n) \approx \left(1 - \frac{l_n}{g_n} - \frac{\partial}{\partial n} \ln g_n \right) \quad \text{IV.41}$$

gilt. Integriert man die Gleichung IV.41, so resultiert

$$\bar{f}_n \propto \exp \int_1^n d\tilde{n} \left(1 - \frac{l_{\tilde{n}}}{g_{\tilde{n}}} \right) \quad \text{IV.42}$$

Für $l_n \approx g_n$, d.h. für Tropfen in der Nähe der stabilen Tropfengröße ist sowohl die Annahme lt. Gleichung IV.40 gerechtfertigt, und auch Gleichung IV.42 läßt sich in die bekannte Gleichgewichtsverteilung umrechnen. Es gilt nämlich

$$1 - \frac{l_n}{g_n} \approx - \ln \left(\frac{l_n}{g_n} \right) \quad \text{und} \quad kT \int_1^n d\tilde{n} \ln \left(\frac{l_{\tilde{n}}}{g_{\tilde{n}}} \right)$$

entspricht dem Potential $\Psi(n, n_x)$ lt. Gleichung IV.27 (vgl. Ref. 9).

Damit ist die Äquivalenz der beiden Fokker-Planck-Gleichungen IV.38 und IV.33 für den Fall gezeigt, daß der Zustand des Systems nicht zu weit vom Gleichgewichtszustand (stabile Tropfen) entfernt ist.

Diese Annahme geht auch bei der Berechnung der Fokker-Planck-Gleichung IV.33 aus der Mastergleichung IV.32 implizit ein. Die Entwicklung des Differenzenquotienten zum Differentialquotienten ist im Rahmen einer allgemeinen Entwicklung nur korrekt bis zu Gliedern zweiter Ordnung. Für die Gültigkeit dieser Approximation darf $(f_n/\bar{f}_n)$ nicht zu groß sein.

Zusammenfassend erkennt man also, daß die kinetische Beschreibung eine Gleichgewichtsnäherung in Bezug auf die hydrodynamische Beschreibung darstellt. Durch die Integration in Gleichung IV.35 wurde die Ortsabhängigkeit vollständig aus der weiteren Behandlung eliminiert, es können deshalb also auch keine Aussagen über die Details der Tropfenstruktur gemacht werden. In anderer Hinsicht ist jedoch die Beschränkung auf die Teilchenzahl als einzige Variable von erheblichem Vorteil. Wie noch eingehend erläutert wird, ist es so nämlich einfacher, experimentell relevante Informationen, wie z.B. die Gesamtzahl von Tropfen und den Anteil der Materie in allen Tropfen zu berechnen.

Dies sind Größen, die im Rahmen der Hydrodynamik nur schwer zugänglich sind. Dafür hat jedoch die hydrodynamische Beschreibung einen größeren Gültigkeitsbereich und es erscheint denkbar, daß in diesem Rahmen Phänomene studiert werden können, für die die kinetische Approximation nicht ausreicht. Ein Beispiel dafür ist der Zerfall von Elektron-Loch-Tropfen nach Abschalten des Lasers⁹⁾. (Dies wird in Kapitel V der vorliegenden Arbeit ausführlich diskutiert.) Im weiteren sollen jedoch einige Ergebnisse mittels der kinetischen Nukleationstheorie erarbeitet werden.

IV.4 Berechnung der Momente der Verteilungsfunktion

Die Ausgangsgleichung für die weitere Diskussion ist im wesentlichen die Fokker-Planck-Gleichung IV.33 mit dem Strom IV.34. Zusätzlich wird noch die Bilanzgleichung für die Gesamtzahl der elektronischen Anregungen im Halbleiter berücksichtigt^{7,14}).

Diese Gleichung kann geschrieben werden als

$$\frac{\partial}{\partial t} \int_1^{\infty} dn n f_n = - \int_1^{\infty} dn n \frac{f_n}{\tau(n)} + G(t) \quad \text{IV.43}$$

Hierbei ist $G(t)$ die Rate, mit der durch Lasereinstrahlung in dem Kristall elektronische Anregungen erzeugt werden. Um Einschaltvorgänge des Lasers erfassen zu können, wird $G(t)$ in der Form angesetzt:

$$G(t) = G_1 \left(1 - e^{-t/t_r} \right) \quad \text{IV.44}$$

Hierbei ist t_r die Anstiegszeit des Lasers.

Die Gleichungen IV.43 und IV. 33 bilden ein kompliziertes System von nichtlinearen Integro-Differentialgleichungen für die Verteilungsfunktion $f_n(t)$. Ein besonderes Problem stellt dabei die in der Gewinnrate g_n (Gl. IV.20) auftretende Exzitonendichte n_x dar. Über den Wahrscheinlichkeitsstrom J_n (Gl. IV.34) koppelt n_x in die Fokker-Planck-Gleichung. Dies führt zu Nichtlinearitäten, da $n_x(t)$ als Integral über f_n berechnet werden kann. $n_x(t)$ ist nicht allein durch die Lasergenerationsrate $G(t)$ bestimmt, sondern auch die Bildung von Elektron-Loch-Tropfen koppelt über die Erhaltungsgleichung für die Gesamtzahl der elektronischen Anregungen mit der Exzitonendichte (vgl. Gl. IV.43).

Eine näherungsweise Behandlung der Gleichungen IV.33 und IV.43 ist jedoch möglich, wenn man die Eigenschaften der Tropfen unterhalb und oberhalb der kritischen Tropfengröße n_c (vgl. Kapitel IV.2) ausnutzt. Wie bereits diskutiert, hat das Potential $\Psi(n, n_x)$ (Gl.IV.27, Figur 14) bei n_c ein Maximum und $\Psi(n_c, n_x)$ ist eine Potentialbarriere zur Nukleation. Diese Potentialbarriere ermöglicht die Näherung, alle Cluster mit $n > n_c$ Teilchen als Tropfen aufzufassen, da sie die Tendenz haben, auf die stabile Tropfengröße zu wachsen. Die Cluster mit $n < n_c$ Teilchen können hingegen näherungsweise als Exzitonen gezählt werden, da diese Cluster die Tendenz haben, wieder zu verdampfen.

Die kritische Tropfengröße kann leicht abgeschätzt werden. Da bei so kleinen Tropfen die Verluste durch Rekombination von Teilchen nicht so wichtig sind, ist eine gute Näherung für n_c der Ausdruck aus der klassischen Nukleationstheorie lt. Gleichung IV.16. Die exakte Bestimmung von n_c erfolgt durch numerische Lösung der transzendenten Gleichung

$$\left. \frac{\partial}{\partial n} \Psi(n, n_x) \right|_{n=n_c} = 0 \quad \text{IV.45}$$

mit der Bedingung

$$\left. \frac{\partial^2}{\partial n^2} \Psi(n, n_x) \right|_{n=n_c} < 0$$

Damit kann man die oben diskutierte Zerlegung in Formeln ausdrücken. Die Dichte n_d aller Teilchen in Elektron-Loch-Tropfen erhält man als

$$n_d \approx \int_{n_c}^{\infty} dn \, n \, f_n = x_1, \quad \text{IV.46}$$

wobei mit x_1 das erste Moment der Tropfenverteilungsfunktion f_n bezeichnet wird. Die Exzitonendichte n_x ist

$$n_x \approx \int_1^{n_c} dn \, n \, f_n. \quad \text{IV.47}$$

Mittels dieser Zerlegung kann man die Erhaltungsgleichung IV.43 aufspalten

$$\frac{\partial}{\partial t} n_x + \frac{\partial}{\partial t} n_d = -\frac{n_x}{\tau_x} - \frac{n_d}{\tau_d} + G(t). \quad \text{IV.48}$$

Hierbei wurde zusätzlich die Näherung gemacht, daß es im System der elektronischen Anregungen im wesentlichen zwei effektive Lebensdauern gibt:

- 1.) die Lebensdauer der Exzitonen τ_x
- 2.) die Lebensdauer der Elektron-Loch-Paare
in Tropfen τ_d

(Es gilt in Ge $\tau_d \approx 4 \tau_x$, vgl. Anhang A.2)

Definiert man das α -te Moment x_α der Tropfenverteilung f_n als

$$x_\alpha = \int_{n_c}^{\infty} dn \, n^\alpha \, f_n, \quad \text{IV.49}$$

so kann man identifizieren:

$x_1 = n_d$ = Dichte aller Elektron-Loch-Paare,
die in Tropfen kondensiert sind

und $x_0 = \int_{n_c}^{\infty} dn \, f_n$ = Dichte der Elektron-Loch-Tropfen.

Für die Momente kann man Bestimmungsgleichungen herleiten. Es gilt

$$\frac{\partial}{\partial t} x_{\alpha} = - n_c^{\alpha} f_{n_c} \frac{\partial}{\partial t} n_c + \int_{n_c}^{\infty} dn n^{\alpha} \frac{\partial}{\partial t} f_n \quad \text{IV.50}$$

Verwendet man für $\frac{\partial f_n}{\partial t}$ die Fokker-Planck-Gleichung IV.33, so erhält man

$$\int_{n_c}^{\infty} dn n^{\alpha} \frac{\partial}{\partial t} f_n = - \int_{n_c}^{\infty} dn n^{\alpha} \frac{\partial}{\partial n} J_n$$

Partielle Integration und Einsetzen in Gleichung IV.50 liefert (da $n^{\alpha} J_n \Big|_{n=\infty} = 0$)

$$\frac{\partial}{\partial t} x_{\alpha} = n_c^{\alpha} (J_{n_c} - \dot{n}_c f_{n_c}) + \alpha \int_{n_c}^{\infty} dn n^{\alpha-1} J_n \quad \text{IV.51}$$

Der erste Term auf der rechten Seite von Gleichung IV.51 ist gerade $n_c^{\alpha} \dot{x}_0$, also $(\dot{x}_0 = \frac{\partial}{\partial t} x_0)$

$$\dot{x}_0 = J_{n_c} - \dot{n}_c f_{n_c} \quad \text{IV.52}$$

wie man für $\alpha=0$ aus Gleichung IV.51 ablesen kann.

Für den Strom J_n verwendet man den Ausdruck aus der Mastergleichung IV.32 (vgl. Gl. IV.2)

$$J_n = f_n g_n - f_{n+1} l_{n+1} \quad \text{IV.53}$$

mit g_n lt. Gleichung IV.20 und l_n lt. Gleichung IV.19.

Der Strom soll in die Momentengleichung IV.51 eingesetzt werden, die nur für große Werte von n gilt ($n > n_c$). Näherungs-

weise kann man daher annehmen

$$f_{n+1} l_{n+1} \approx f_n l_n \quad (n > n_c) .$$

Damit vereinfacht sich Gleichung IV.53 zu

$$\dot{J}_n = f_n (g_n - l_n) = f_n \left(n^{2/3} n_x b - \frac{n}{\tau_d} - a(n) n^{2/3} \right)$$

IV.54

(vgl. Gl. IV.20 und IV.19).

In dem Koeffizienten $a(n)$ (Gl. IV.30) tritt die Abhängigkeit von der Teilchenzahl im Nenner des Exponenten auf

$$a(n) \propto \exp \left[-\beta \left(\phi - \frac{2}{n_0^{2/3}} \left(\frac{4\pi}{3n} \right)^{1/3} \sigma \right) \right] .$$

Der Oberflächenterm $\propto \sigma/n^{1/3}$ liefert für große Tropfen nur einen geringen Korrekturbeitrag zu der Austrittsarbeit ϕ , der im weiteren vernachlässigt wird. Mit dieser Näherung erhält man (lt. Gl. IV.54)

$$\dot{J}_n = f_n n^{2/3} (n_x b - a) - f_n \frac{n}{\tau_d} .$$

IV.55

Einsetzen in Gleichung IV.51 unter Verwendung von Gl. IV.52 führt auf

$$\begin{aligned} \dot{X}_d &= n_c^\alpha \dot{X}_0 - d(a - n_x b) \int_{n_c}^{\infty} dn n^{\alpha-1/3} f_n - \frac{d}{\tau_d} \int_{n_c}^{\infty} dn n^\alpha f_n \\ &= n_c^\alpha \dot{X}_0 - d(a - n_x b) X_{\alpha-1/3} - \frac{d X_d}{\tau_d} . \end{aligned}$$

IV.56

Setzt man $d = 1$ ($x_1 = n_d$) und subtrahiert diese Gleichung von der Bilanzgleichung aller elektronischer Anregungen IV.48, so erhält man eine Gleichung für die Exzitonendichte

$$\dot{n}_x = -\frac{n_x}{\tau_x} - n_c \dot{x}_0 + X_{2/3} (a - n_x b) + G(t) \quad \text{IV.57}$$

Die Gleichungen IV.52, IV.56 und IV.57 bilden für alle $d = \nu/3$ mit $\nu = 2, 3, \dots$ ein geschlossenes System von gewöhnlichen Differentialgleichungen erster Ordnung, da

$$\dot{n}_c = \frac{\partial n_c}{\partial n_x} \dot{n}_x \quad \text{IV.58}$$

(Für $\nu = 3$ wurde ein geschlossenes Gleichungssystem der oben erwähnten Form bereits von Silver⁹⁾ verwendet). Um das Gleichungssystem weiter behandeln zu können, benötigen wir noch Relationen für J_{n_c} und f_{n_c} , die in Gleichung IV.62 eingesetzt werden können. (Die Berechnung von J_{n_c} und f_{n_c} erfolgt weitgehend analog den Rechnungen von Staehli⁷⁾.)

Man kann leicht explizite Ausdrücke für J_{n_c} und f_{n_c} angeben, wenn man annimmt, daß die relevanten Zeiten für die Veränderungen im Gesamtsystem der elektronischen Anregungen größer sind als die Zeit, die nötig ist, bis sich innerhalb der Untersysteme (Exzitonensystem = Gasphase, Tropfensystem) ein Gleichgewicht einstellt. Die Verteilungsfunktion f_n kann dann in einen Exziton- und einen Tropfenanteil zerlegt werden

$$f_n = f_x(n) + f_d(n) \quad \text{IV.59}$$

Für den Term $\dot{n}_c f_{n_c}$ in Gleichung IV.52 setzt man an

$$\dot{n}_c f_{n_c} = \begin{cases} f_d(n_c) \dot{n}_c & \dot{n}_c > 0 \\ f_x(n_c) \dot{n}_c & \dot{n}_c < 0 \end{cases} \quad \text{IV.60}$$

Dies bedeutet, daß in Situationen, in denen die Übersättigung wächst, also die kritische Tropfengröße fällt, die Verteilungsfunktion f_{n_c} durch die Exzitonenverteilungsfunktion approximiert wird, weil beim Tropfenwachstum im wesentlichen Teilchen von der Exzitonenseite her die Potentialbarriere $\Psi(n_c, n_x)$ überqueren. In Situationen, in denen die Übersättigung sinkt, n_c also wächst, nimmt der Anteil der Elektron-Loch-Paare in den Tropfen ab, die Potentialbarriere wird hauptsächlich von der Tropfenseite her überquert. Für die Verteilungen $f_d(n_c)$ und $f_x(n_c)$ werden die jeweiligen Gleichgewichtsverteilungen F_d und F_x eingesetzt.

Es gilt

$$F_x(n_c) \propto e^{-\Psi(n_c, n_x)/kT} \quad \text{IV.61}$$

und

$$F_d(n_c) \propto e^{(\Psi(\bar{n}, n_x) - \Psi(n_c, n_x))/kT}, \quad \text{IV.62}$$

wobei $\bar{n}$ die mittlere Teilchenzahl je Tropfen bedeutet. Durch die Momente ausgedrückt ist $\bar{n}$

$$\bar{n} = x_1 / x_0 \quad \text{IV.63}$$

Da das Potential Ψ , das in den Verteilungen IV.61 und IV.62 in den Exponenten auftritt, sehr stark als Funktion von n_x variiert und große, absolute Werte annimmt (vgl. Figur 14), sind die Vorfaktoren vor den Exponentialfunktionen in den Ver-

teilungen unwesentlich.

Für den Strom über die Potentialbarriere J_{n_c} erhält man aus Gleichung IV.34

$$J_{n_c} = -q_{n_c} \left(\frac{\partial f_n}{\partial n} \Big|_{n=n_c} - f_n \frac{\partial \ln \bar{f}_n}{\partial n} \Big|_{n=n_c} \right)$$

$$= -q_{n_c} \frac{\partial f_n}{\partial n} \Big|_{n=n_c} , \quad \text{IV.64}$$

da lt. Gleichung IV.27

$$\frac{\partial \ln \bar{f}_n}{\partial n} \Big|_{n=n_c} \propto \frac{\partial \psi}{\partial n} \Big|_{n=n_c} = 0 ,$$

denn ψ hat bei n_c ein Maximum.

Somit sind alle in dem Gleichungssystem IV.52, IV.56 und IV.57 auftretenden Größen bekannt und die Differentialgleichungen können numerisch gelöst werden. Für die numerische Behandlung wurde $\gamma = 6$ gewählt, d.h. es wurden 8 gekoppelte Differentialgleichungen erster Ordnung für die Momente $x_2, x_{5/3}, x_{4/3}, \dots, x_0$ und für n_x gelöst.

Diese Berechnung wurde für verschiedene Generationsraten der Form IV.44 für Germanium bei $T = 2.1 \text{ K}$ durchgeführt. (Für die anderen Materialparameter vgl. Anhang A.2.) Man erhält auf diese Art nicht nur die Zeitabhängigkeit der Exzitonen- (n_x) und Tropfenkonzentration (x_0), sondern auch die der Dichte aller kondensierten Elektron-Loch-Paare (x_1) und der mittleren Teilchenzahl pro Tropfen ($\bar{n} = x_1/x_0$). Darüberhinaus kann man das

mittlere Schwankungsquadrat $\overline{(\Delta n)^2}$ der Tropfenverteilungsfunktion bestimmen als

$$\overline{(\Delta n)^2} = \left[\frac{x_2}{x_0} - \left(\frac{x_1}{x_0} \right)^2 \right] / \left(\frac{x_1}{x_0} \right)^2 \quad \text{IV.65}$$

In Figur 15 ist die Zeitentwicklung all dieser Größen aufgetragen. Die Laseranstiegszeit wurde mit $t_r = 1000 \mu s$ relativ lang im Vergleich zur Exzitonenlebensdauer $\tau_x = 11 \mu s$ und der Lebensdauer der Elektron-Loch-Paare in den Tropfen $\tau_d = 41 \mu s$ gewählt.

Mit dieser langen Anstiegszeit des Lasers befindet man sich im Regime der sogenannten langsamen Nukleation. In Figur 15 erkennt man, daß für kleine Zeiten die Exzitondichte zunächst proportional mit der Generationsrate $G(t)$ anwächst. Obwohl $G(t)$ noch nicht seinen Maximalwert G_1 erreicht hat, wird die Übersättigung im System schließlich schon so hoch, daß die Tropfennukleation einsetzt. Es wird relativ schnell eine Tropfendichte von $x_0 \approx 3 \cdot 10^5 \text{ cm}^{-3}$ erreicht. Dadurch wird die Übersättigung abgebaut (n_x sinkt) und die Tropfenbildung kommt zum Stillstand ($x_0 = \text{konstant}$). Wegen der weiterhin ansteigenden Generationsrate $G(t)$ wächst schließlich die Exzitonenkonzentration wieder leicht an und es werden mehr Tropfen gebildet (n_x und x_0 wachsen). Die mittlere Tropfengröße $\bar{n}$ wächst von n_c (bei der Bildung der ersten Tropfen, auf Fig. 15 nicht ersichtlich) auf den stabilen Wert $n_s(n_x)$ an, der dem Minimum des Potentials $\Psi(n, n_x)$ entspricht. Wie der spätere Vergleich mit der Situation bei schnellerer Anstiegszeit des Lasers zeigen wird, werden bei der in Figur 15 dargestellten

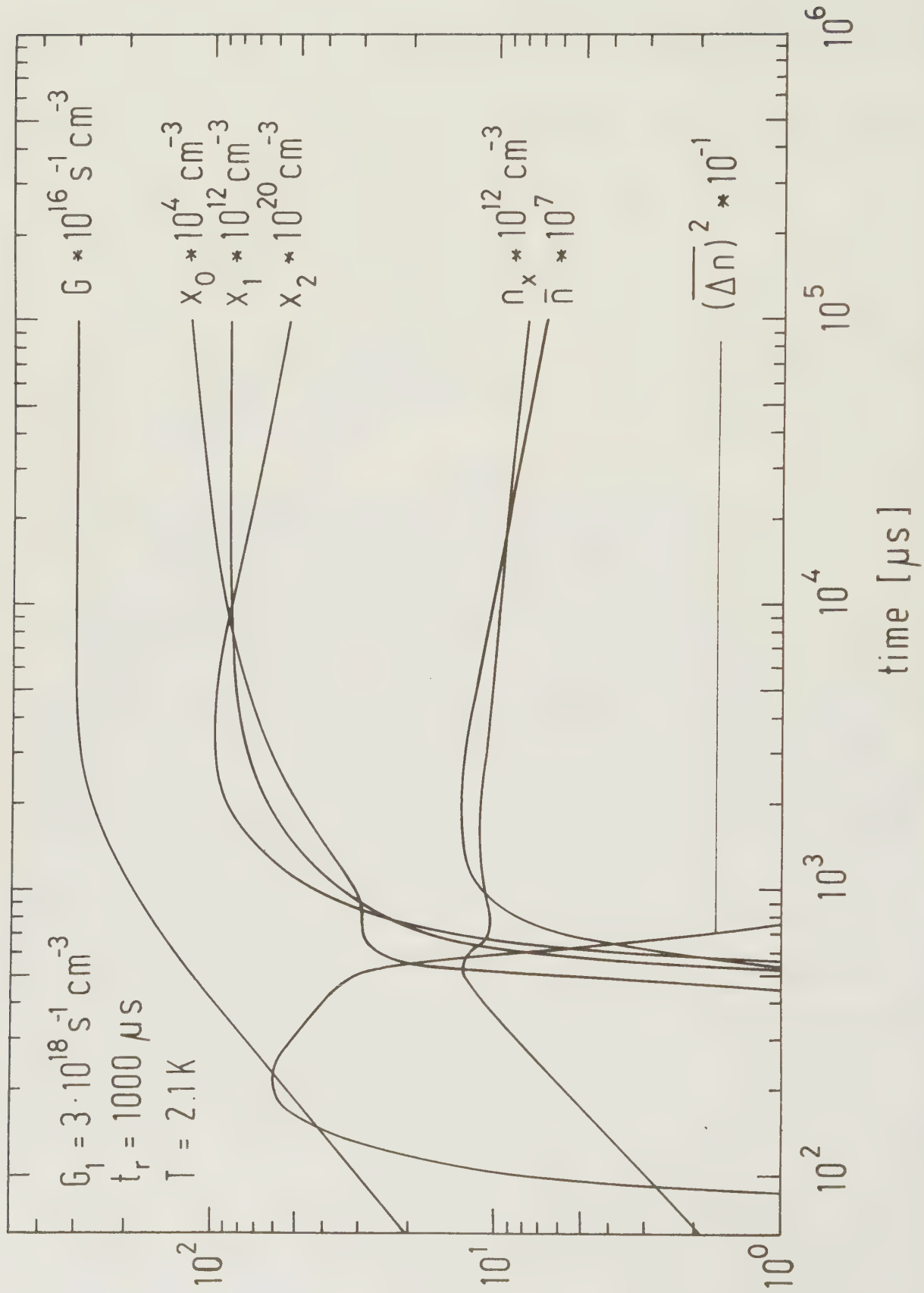


Fig. 15 Zeitabhängigkeit der Exzitonenkonzentration n_x und der Momente x_0 , x_1 , x_2 der Tropfen-Verteilungsfunktion für Germanium bei $T = 2.1 \text{ K}$. $\bar{n} = x_1/x_0$ ist die mittlere Teilchenzahl pro Tropfen, $(\overline{\Delta n})^2$ ist das mittlere relative Schwankungsquadrat der Tropfenver-

langsamen Nukleation relativ wenige Elektron-Loch-Tropfen gebildet, die aber recht groß sind.

In dem Zeitintervall $10^2 - 10^3 \mu s$, in dem die ersten Tropfen gebildet werden, treten starke Schwankungen in der Tropfengröße auf, $(\overline{\Delta n})^2$ ist groß. Mit wachsender Zeit nimmt das mittlere Schwankungsquadrat ab. Es werden bei der Nukleation also zunächst Tropfen von unterschiedlicher Größe gebildet. Im Laufe der Zeit pendelt sich jedoch der Radius aller Tropfen auf den stabilen Tropfenradius ein, da die Bildung solcher Tropfen eine maximale Energieerniedrigung für das Gesamtsystem der elektronischen Anregungen bedeutet.

In Figur 16 der vorliegenden Arbeit sind die Ergebnisse der numerischen Integration der Gleichungen IV.52, IV.56 und IV.57 für eine Laser-Anstiegszeit $t_r = 10 \mu s$ aufgetragen. In diesem Regime der schnellen Nukleation erkennt man in Figur 16 ein starkes Anwachsen der Exzitonenkonzentration mit der Generationsrate. Zu dem Zeitpunkt, da $G(t)$ praktisch seinen Maximalwert erreicht hat, findet die Tropfennukleation statt und die Exzitondichte wird abgebaut. Dieses Überschießen der Exzitonenkonzentration ist für das Regime der schnellen Nukleation charakteristisch. Hier erreichen auch die Momente x_0 , x_1 und x_2 schnell konstante Werte, die eine Gleichgewichtssituation im Gesamtsystem der elektronischen Anregungen charakterisieren. Das Zeitintervall, in dem große Fluktuationen in der Tropfengröße auftreten, ist bei der schnellen Nukleation wesentlich kleiner als im Regime der langsamen Nukleation. Die Tropfen erreichen also schnell den stabilen Radius. Im Vergleich zu Figur 15 erkennt man, daß bei der Situation in

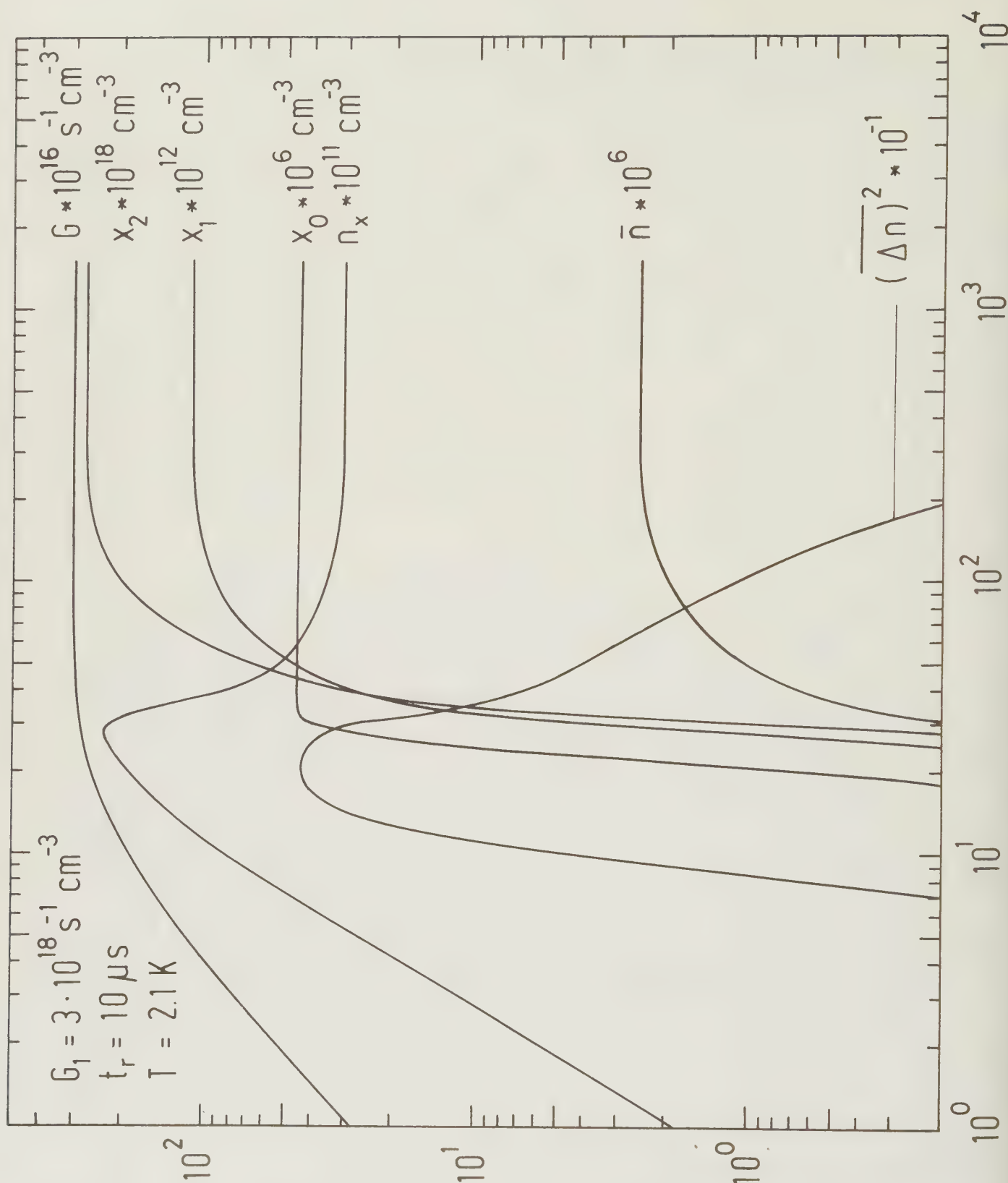


Fig. 16 Zeitabhängigkeit der Exzitonenkonzentration n_x und der Momente x_0, x_1, x_2 der Tropfen-Verteilungsfunktion für Germanium bei $T = 2.1 \text{ K}$. $\bar{n} = x_1/x_0$ ist die mittlere Teilchenzahl pro Tropfen, $(\overline{\Delta n})^2$ ist das mittlere relative Schwankungsquadrat der Tropfenverteilung und $G(t)$ ist die Generationsrate lt. Gl. IV.44 mit $G_1 = 3 \cdot 10^{18} \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-3}$ und $t_r = 10 \mu\text{s}$.

Figur 16 recht viele, aber relativ kleine Tropfen gebildet werden.

In Figur 17 ist die jeweils erreichte Gleichgewichtskonzentration der Exzitonen, der Tropfen und der Elektron-Loch-Paare in den Tropfen und die mittlere Tropfengröße als Funktion der Laseranstiegszeit t_r aufgetragen. Für langsame Anstiegszeiten wurden die Kurven extrapoliert (gestrichelt in Figur 17), da hier die Gleichgewichtssituation erst sehr spät erreicht wird. (Vgl. Figur 15.) Man erkennt in Figur 17, daß bei schneller Nukleation der Anteil der Elektron-Loch-Paare in den Tropfen sehr hoch ist und die Exzitonendichte dementsprechend niedrig.

Die Gleichgewichtsübersättigung $S = n_x/n_s$ ist also nicht sehr hoch und die mittlere Tropfengröße ist relativ klein. Bei der schnellen Nukleation ist in dem System der elektronischen Anregungen aufgrund des hohen Überschießens der Exzitonendichte kurzzeitig eine große Übersättigung vorhanden. Die kritische Tropfengröße wird in diesem Moment sehr klein und es werden dementsprechend sehr schnell viele kleine Tropfen gebildet. Dadurch wird die Übersättigung sehr effektiv abgebaut. Die Tropfen können nun nicht mehr weiterwachsen, wie im Falle der langsamen Nukleation, sondern sie erreichen schnell ihre stabile Größe.

In Figur 18 ist schließlich die Abhängigkeit der Größen von der Lasergenerationsrate G_1 aufgetragen. Bei höheren Generationsraten ist der in den Tropfen kondensierte Anteil der Elektron-Loch-Paare höher und die Exzitonendichte dementspre-

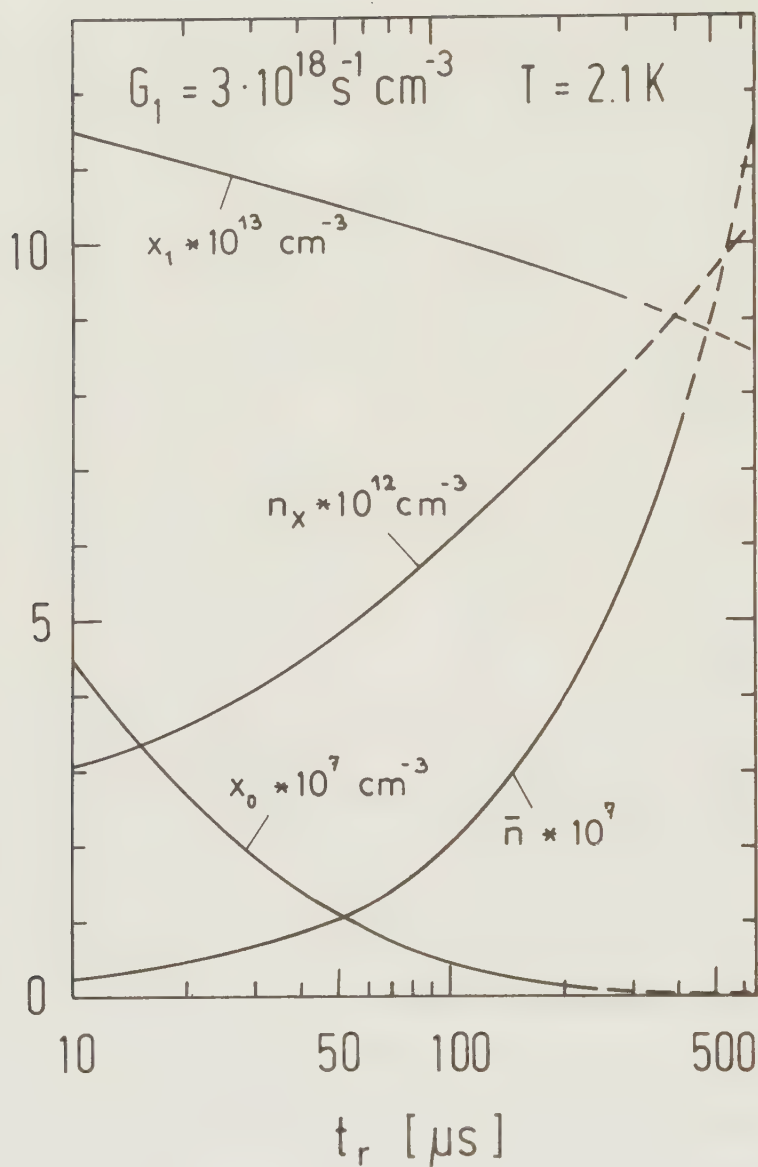


Fig. 17 Abhängigkeit der stationären Größen x_0 , x_1 , n_x und $\bar{n}$ von der Laseranstiegszeit t_r für $G_1 = 3 \cdot 10^{18} \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-3}$.
(Der gestrichelte Teil der Kurve wurde extrapoliert, da für so langsame Laseranstiegszeiten erst nach sehr langen Zeiten ein stationärer Zustand erreicht wird.)

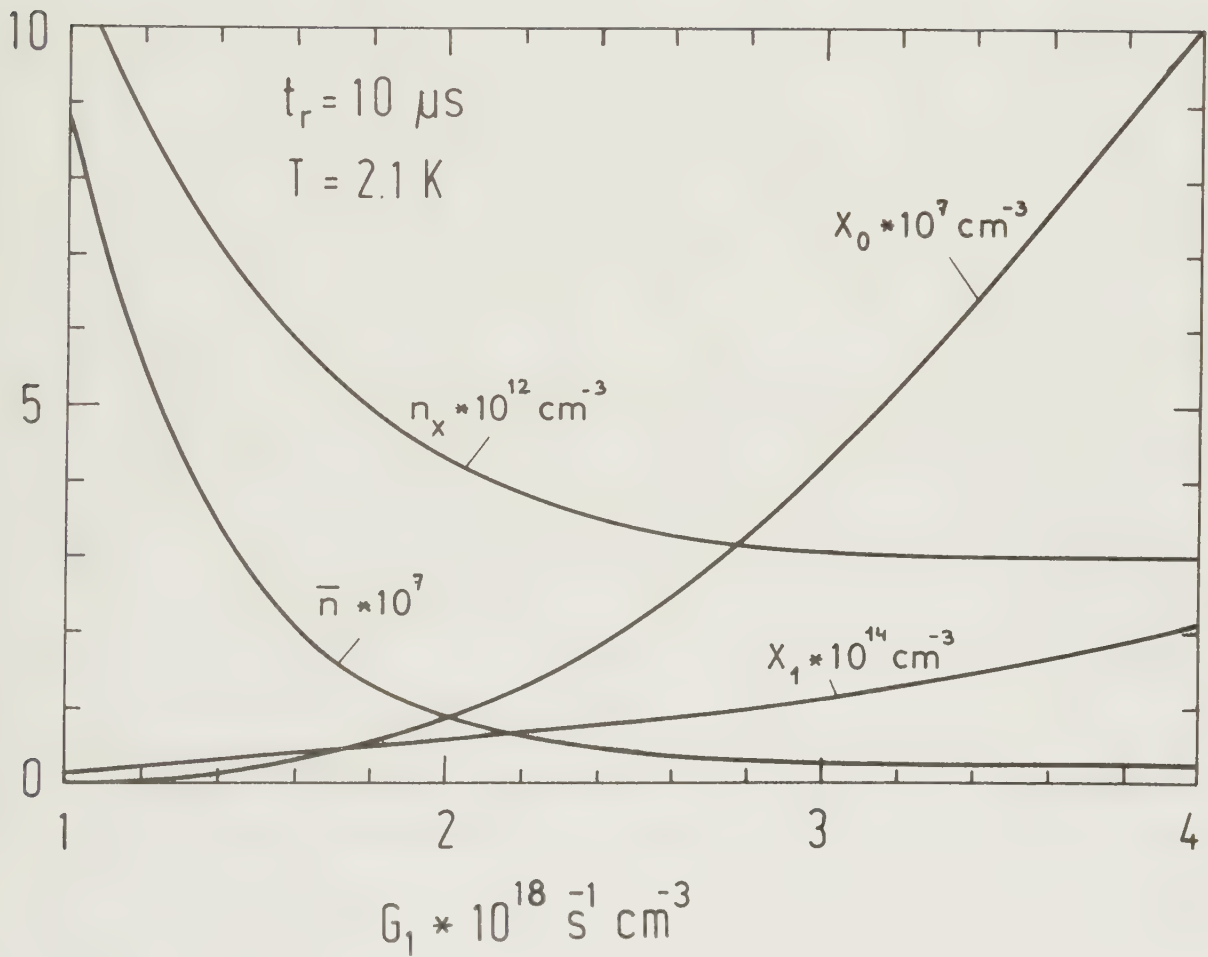


Fig. 18 Abhängigkeit der stationären Größen x_0 , x_1 , n_x und $\bar{n}$ von der Generationsrate G_1 für eine Laseranstiegszeit $t_r = 10 \text{ } \mu\text{s}$.

chend niedriger. Die Tropfen sind kleiner, aber es sind viel mehr Tropfen vorhanden, als bei niedrigerer Generationsrate. Höhere Laserleistung und schnellere Laseranstiegszeit führen in Bezug auf die Elektron-Loch-Tropfennukleation tendenzmäßig zu den gleichen Effekten.

Ähnliche Resultate wie in Figur 15 und 16 wurden auch von Staehli⁷⁾ für x_0 , x_1 und n_x berechnet und mit eigenen Experimenten verglichen. Seine wichtigsten Ergebnisse sind in Figur 19 wiedergegeben. Die linken Bilder zeigen die experimentellen Resultate für Germanium bei den angegebenen Temperaturen. Als Kurve 1 ist jeweils die integrierte Exzitonen- und als Kurve 2 die integrierte Elektron-Loch-Tropfen-Lumineszenz aufgetragen. Die Anregung erfolgte mit Laserpulsen, die näherungsweise der Gleichung IV.44 genügen. Die rechten Bilder in Figur 19 zeigen die theoretischen Ergebnisse.

Durchgezogen ist jeweils die Kurve der Exzitondichte n_x , kurz gestrichelt wurde die Tropfendichte x_0 aufgetragen und lang gestrichelt die Dichte aller Elektron-Loch-Paare in Tropfen x_1 . Die Kurven 1 in den experimentellen Ergebnissen müssen mit den theoretischen Kurven für n_x und die Kurven 2 mit den theoretischen Resultaten für $n_d = x_1$ verglichen werden. Bei höheren Temperaturen ($T = 2.71$ bis $T = 2.5$ K) kann die Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment als exzellent bezeichnet werden. Deutlich ist bei 2.3 K und 2.5 K in den experimentellen Kurven das Überschießen der Exzitonenkonzentration zu erkennen. Bei tieferen Temperaturen ist die Übereinstimmung der Kurven 2 mit den theoretischen Kurven für

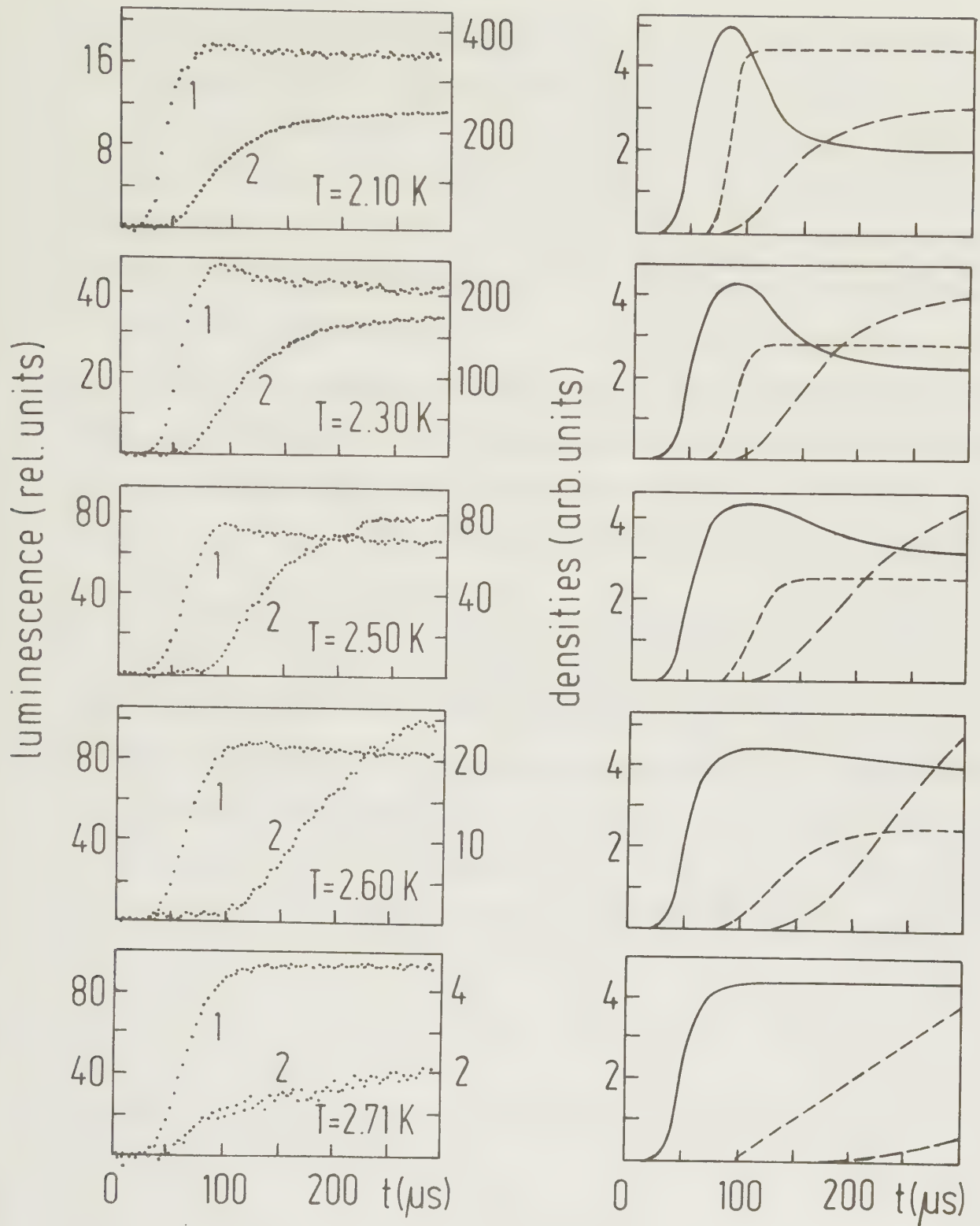


Fig. 19 linke Spalte: Experimentelle Resultate für Germanium bei den angegebenen Temperaturen. Kurve 1 ist die integrierte Exzitonen-Lumineszenz und Kurve 2 ist die integrierte Elektron-Loch-Tropfen-Lumineszenz. (Aufgetragen wurde in relativen Einheiten, Kurve 1 lt. Skala am linken Rand und Kurve 2 lt. Skala am rechten Rand der Bilder.)
rechte Spalte: Zeitabhängigkeit der berechneten Größen n_x (—), x_1 (— —) und x_0 (----) lt. Ref. 7.

x_1 immer noch sehr gut. Die theoretischen Ergebnisse für die Exzitonenkonzentration zeigen aber mit fallender Temperatur ein immer stärkeres Überschießen, das in den Experimenten nicht zu erkennen ist. Diese Diskrepanz führt Staehli unter anderem darauf zurück, daß die in der Theorie gemachten Näherungen mit fallender Temperatur schlechter werden. Insbesondere werden bei tiefen Temperaturen die Werte für die kritische Tropfengröße immer kleiner, die Näherungen sind im wesentlichen jedoch nur für große Tropfen zu rechtfertigen, d.h. sie sind im Augenblick der Tropfenbildung bei kleinem n_c also sicher nur unzureichend gerechtfertigt.

Die im Rahmen der vorliegenden Arbeit zusätzlich berechnete relative Schwankung der Tropfengröße (vgl. Figur 15, 16) kann momentan noch nicht mit experimentellen Resultaten verglichen werden, da solche Messungen bisher nicht veröffentlicht wurden. Die theoretischen Resultate sind jedoch sehr anschaulich zu verstehen, da die großen Schwankungen in dem Zeitintervall auftreten, in dem die Tropfen gebildet werden.

IV.5 Konstruktion der zeitabhängigen Wahrscheinlichkeits- verteilung für Elektron-Loch-Tropfen

Die numerisch berechnete Zeitabhängigkeit der Momente x_2 , x_1 und x_0 und der Exzitonenkonzentration soll nun verwendet werden, um eine Lösung der Fokker-Planck-Gleichung IV.33 zu konstruieren.

Um einen wohlbegründeten Ansatz für die volle Verteilungsfunktion machen zu können, soll zunächst die Fokker-Planck-Gleichung IV.33 für konstante Exzitonendichte $n_x(t) = \text{const.}$ gelöst werden. Diese Lösung beschreibt Situationen, in denen $n_x(t)$ sehr langsam im Vergleich zu $x_d(t)$ variiert. Dies ist im Augenblick der Tropfennukleation und beim Erreichen der Gleichgewichtssituation (für große Zeiten) der Fall.

Aus $n_x(t) = \text{const.}$ folgt wegen Gleichung IV.20 $g_n(t) = g_n$ und die Fokker-Planck-Gleichung IV.33

$$\frac{\partial}{\partial t} f_n = \frac{\partial}{\partial n} \left[g_n \left(\frac{\partial f_n}{\partial n} - \frac{f_n}{\bar{f}_n} \frac{\partial}{\partial n} \bar{f}_n \right) \right] \quad \text{IV.66}$$

wird zu einer linearen Gleichung für $f_n(t) = f(n, t)$.

Die Lösung entwickeln wir nach Eigenfunktionen (vgl. z.B. Ref. 49, 50)

$$f(n, t) = c_0 f_0(n) + \sum_{k=1}^{\infty} c_k f_k(n) e^{-\lambda_k t}, \quad \text{IV.67}$$

wobei $f_k(n)$ die Eigenfunktionen und λ_k die zugehörigen Eigenwerte sind. Die Eigenfunktion zu dem tiefsten Eigenwert

$$\lambda_0 = 0$$

ist die Gleichgewichtsverteilung

$$f_0(n) = \bar{f}_n, \quad \text{IV.68}$$

wie man durch Einsetzen in Gleichung IV.66 sofort erkennt.

Mittels der Entwicklung IV.67 erhält man aus der Fokker-Planck-Gleichung IV.66 die Eigenwertgleichung

$$\lambda_k f_k + \frac{\partial}{\partial n} \left[g_n \left(\frac{\partial f_k}{\partial n} - \frac{f_k}{f_0} \frac{\partial f_0}{\partial n} \right) \right] = 0 \quad \text{IV.69}$$

Mit dem Ansatz

$$f_k = f_0 h_k \quad \text{IV.70}$$

reduziert sich diese Gleichung auf eine Sturm-Liouville-Gleichung für $h_k(n)$

$$\lambda_k f_0 h_k + \frac{\partial}{\partial n} \left(g_n f_0 \frac{\partial h_k}{\partial n} \right) = 0 \quad \text{IV.71}$$

Sturm-Liouville-Gleichungen ähnlicher Struktur treten oft bei der Eigenwertanalyse von Fokker-Planck-Gleichungen auf (vgl. z.B. Ref. 49). Durch die folgenden Transformationen⁵¹⁾ kann man die Gleichung IV.71 noch wesentlich vereinfachen:

Man definiert eine Funktion u_k als

$$u_k = (f_0^2 g_n)^{1/4} h_k = \bar{F} h_k \quad \text{IV.72}$$

und transformiert auf eine neue Variable x

$$x = \int_{n_c}^n d\tilde{n} \, g_{\tilde{n}}^{-1/2} . \quad \text{IV.73}$$

Die explizite Durchführung der Gesamttransformation ist etwas aufwendig und soll hier nicht geschildert werden. Wichtig ist lediglich, daß die Funktion $u_k(x)$ einer einfachen Differentialgleichung genügt. Diese erhält man als

$$\frac{\partial^2 u_k}{\partial x^2} - V(x) u_k + \lambda_k u_k = 0 . \quad \text{IV.74}$$

Gleichung IV.74 hat die Struktur einer eindimensionalen Schrödinger-Gleichung mit dem Potential

$$V(x) = \frac{1}{F(x)} \frac{\partial^2 F}{\partial x^2} . \quad \text{IV.75}$$

Dieses Potential kann explizit berechnet werden. Da die resultierende Gleichung etwas lang ist, wird sie hier unterdrückt und im Anhang A.3 angegeben. Stattdessen wurde in Figur 20 das exakte Potential $V(x)$ für eine Übersättigung $n_x/n_s = 10$ aufgetragen.

Man erkennt ein scharfes Potentialminimum in der Nähe der stabilen Tropfengröße n_s (entspricht $x = 4 \cdot 10^3$). Das zusätzliche relative Minimum in der Nähe von $n = n_c$ (kleine x) ist durch die logarithmische Auftragung in Figur 20 überbent. Dieses Potentialminimum ist für die Bildung stabiler Tropfen irrelevant.

Das Potential $V(x)$ hat für alle Werte der Übersättigung

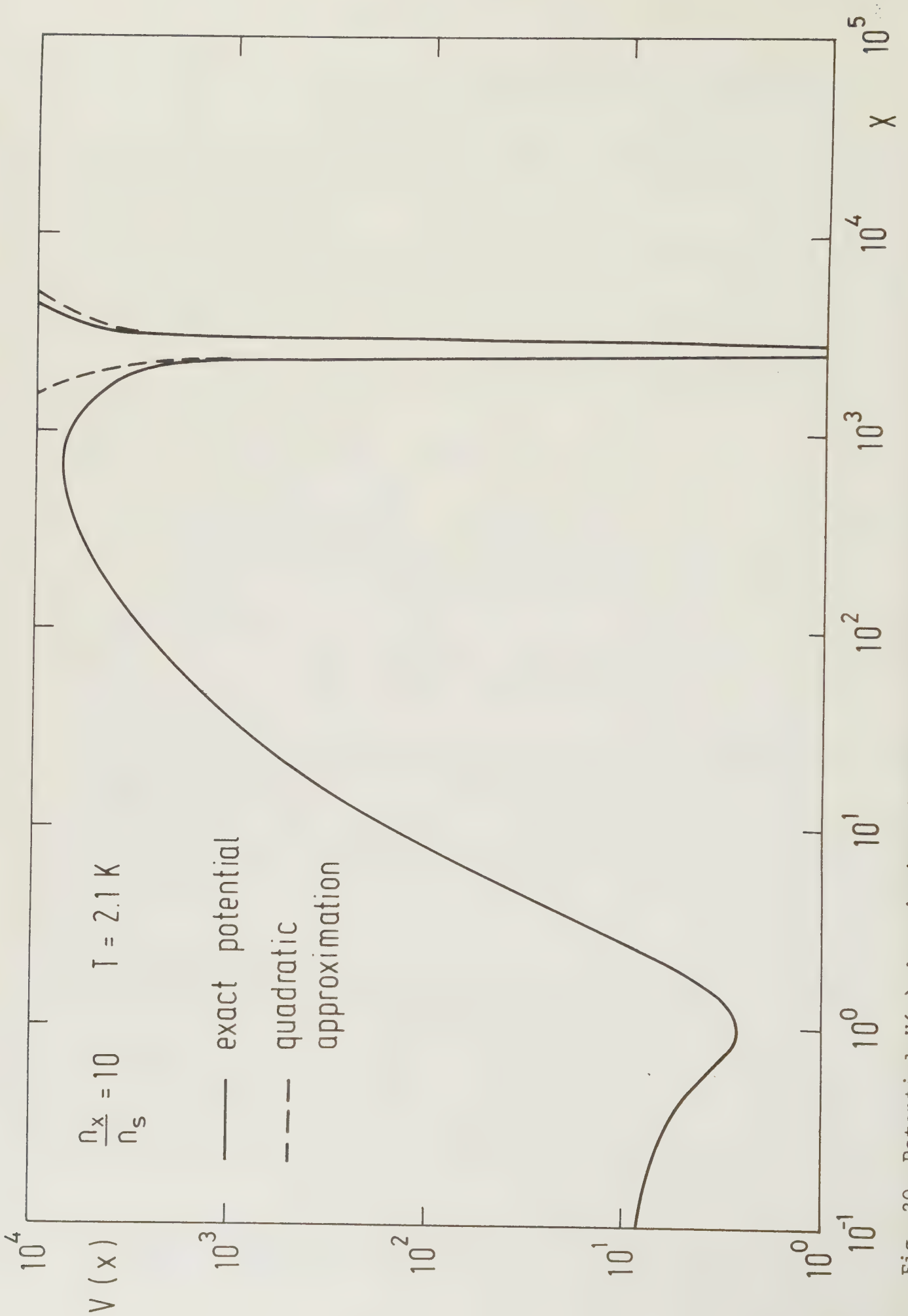


Fig. 20 Potential $V(x)$ der eindimensionalen Schrödinger-Gleichung IV.74. Die gestrichelte Kurve ist die quadratische Approximation lt. Gl. IV.76

$S = n_x/n_s > 1$ die gleiche Struktur wie für $S = 10$ lt. Figur 20. Mit wachsender Übersättigung vergrößert sich jedoch der Abstand zwischen den beiden Minima und die Potentialbarriere zwischen ihnen wird immer höher.

Für die weitere Behandlung der Schrödinger-Gleichung IV.74 haben wir das Potential $V(x)$ um das stabile Minimum x_m quadratisch entwickelt:

$$V(x) \approx V(x_m) + (x - x_m)^2 \frac{1}{2} \frac{\partial^2 V}{\partial x_m^2} \quad \text{IV.76}$$

Diese Entwicklung ist in Figur 20 gestrichelt eingezeichnet. Man erkennt, daß sie über mehrere Zehnerpotenzen in V das Potential nahezu exakt approximiert.

Einsetzen der Entwicklung IV.76 in die Gleichung IV.74 führt auf die Schrödinger-Gleichung des harmonischen Oszillators

$$\frac{\partial^2 u_k}{\partial \xi^2} - \xi^2 u_k + \epsilon_k u_k = 0 \quad \text{IV.77}$$

Hierbei gilt

$$\xi = (x - x_m) \left(\frac{1}{2} \frac{\partial^2 V}{\partial x_m^2} \right)^{1/2} \quad \text{IV.78}$$

und

$$\epsilon_k = (\lambda_k - V(x_m)) / \left(\frac{1}{2} \frac{\partial^2 V}{\partial x_m^2} \right)^{1/2} \quad \text{IV.79}$$

Eigenwerte und Eigenfunktionen des harmonischen Oszillators werden in praktisch allen Textbüchern über Quantenmechanik

berechnet (vgl. z.B. Ref. 52). Man erhält

$$\varepsilon_k = 2k + 1, \quad k = 0, 1, 2, \dots \quad \text{IV.80}$$

und

$$u_k(\xi) = c e^{-\xi^2/2} H_k(\xi), \quad \text{IV.81}$$

wobei $H_k(\xi)$ die Hermiteschen Polynome sind⁵³⁾. C ist eine Proportionalitätskonstante, die in der Quantenmechanik zur Normierung der Funktionen verwendet wird.

Macht man nun alle Transformationen rückgängig, so erhält man die Eigenfunktionen $f_k(n)$ als

$$f_k(n) = f_0^{1/2} (b n_x n^{2/3})^{-1/4} e^{-\xi(n)/2} H_k(\xi(n)), \quad \text{IV.82}$$

wobei

$$\xi(n) = \left[\frac{1}{2} \frac{\partial^2 V}{\partial x_m^2} \right]^{1/4} (b n_x)^{-1/2} \frac{3}{2} \left(n^{2/3} - \bar{n}^{2/3} \right). \quad \text{IV.83}$$

Für die Eigenwerte gilt

$$\lambda_k = \left[\frac{1}{2} \frac{\partial^2 V}{\partial x_m^2} \right]^{1/2} (2k+1) + V(x_m). \quad \text{IV.84}$$

Die numerische Analyse liefert (bis zur Rechengenauigkeit)

$$\lambda_0 = 0$$

und man kann damit schreiben

$$\lambda_k = 2k \left[\frac{1}{2} \frac{\partial^2 V}{\partial x_m^2} \right]^{1/2} \quad \text{IV.85}$$

Die Eigenwerte sind äquidistant. Der Abstand zwischen ihnen ist so groß, daß man sich bei der Konstruktion der zeitabhängigen Lösung $f(n,t)$ lt. Gleichung IV.67 auf die niedrigsten Eigenwerte beschränken kann, da die Lösungen mit den höheren Eigenwerten sehr schnell abklingen. Für die weiteren Rechnungen wurden λ_0 , λ_1 und λ_2 berücksichtigt.

Bisher kennt man also die Lösung der Fokker-Planck-Gleichung für eine konstant gesetzte Exzitonendichte n_x . Um die volle Verteilungsfunktion berechnen zu können, die die Momente $x_0(t)$, $x_1(t)$ und $x_2(t)$ reproduziert, muß die Exzitonendichte variabel angesetzt werden. In Kapitel IV.4 der vorliegenden Arbeit wurde ausgeführt, daß man bei variabler Exzitonendichte $n_x(t)$ eine nichtlineare partielle Integro-Differentialgleichung für f erhält. Um diese nicht explizit lösen zu müssen, wird nun die Verteilungsfunktion $f(n,t)$ angesetzt als

$$f(n,t) = \sum_{k=0}^2 c_k(t) f_k(n) e^{-\lambda_k t} \quad \text{IV.86}$$

Die zeitabhängigen Koeffizienten $c_k(t)$ werden durch Anpassung der mit $f(n,t)$ berechneten Momente an die numerisch direkt berechneten Momente (z.B. lt. Figur 16) bestimmt.

Auf diese Art kann man die volle Wahrscheinlichkeitsverteilung $f(n,t)$ bei variabler Exzitonendichte bestimmen. In Figur 21

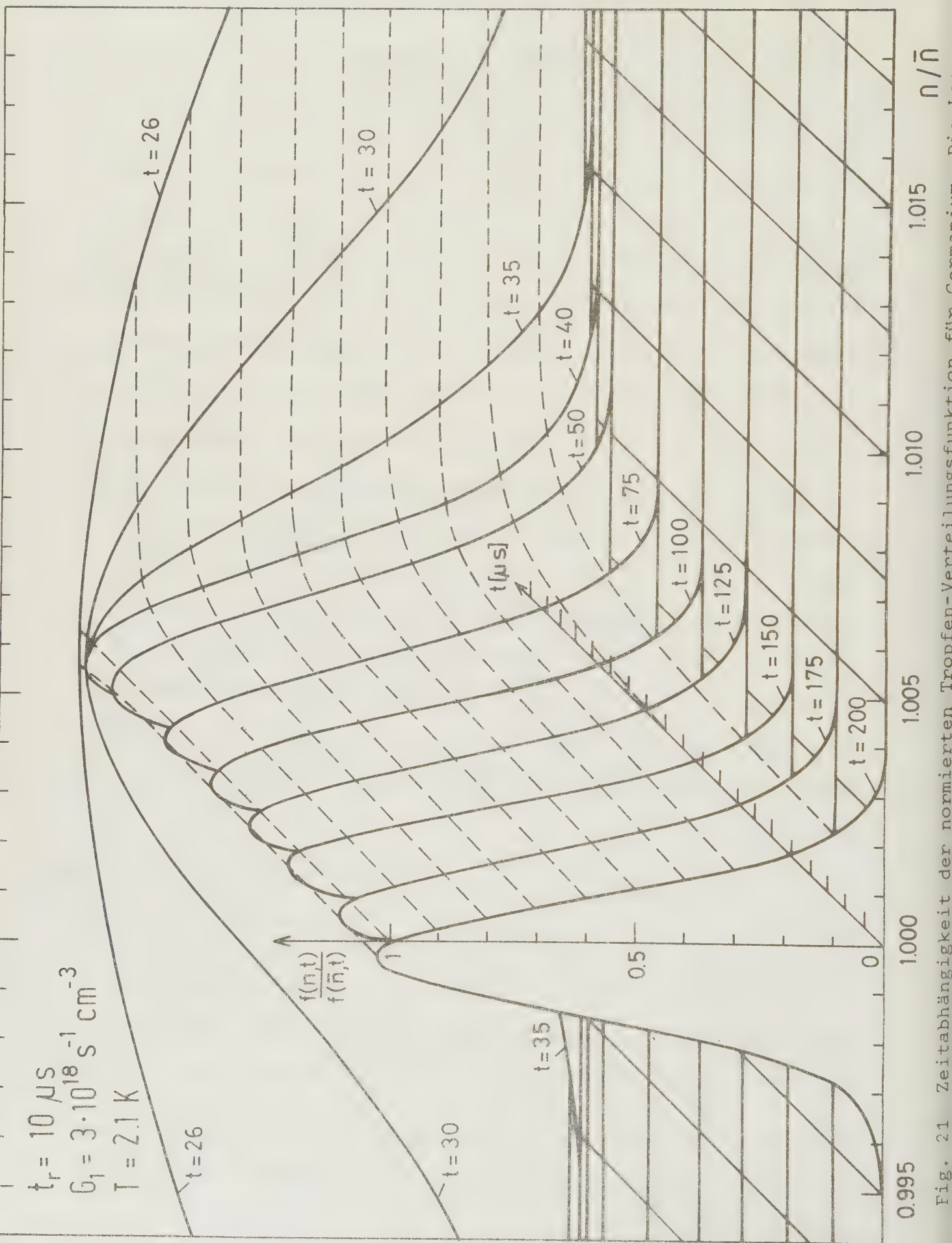


Fig. 21 Zeitabhängigkeit der normierten Tropfen-Verteilungsfunktion für Germanium.

ist diese Verteilungsfunktion für das Beispiel der schnellen Elektron-Loch-Nukleation lt. Figur 16 dargestellt.

Man erkennt, wie die Verteilungsfunktion zu kleineren Zeiten hin immer breiter wird und in ihrem zeitlichen Verlauf genau dem mittleren Schwankungsquadrat $\overline{(\Delta n)}^2$ von Figur 16 folgt. Für große Zeiten befindet sich das System im Gleichgewicht, $f(n,t)$ nähert sich der Gleichgewichtsverteilung $\bar{f}_n$. Zum Zeitpunkt der Tropfennukleation ($t \approx 20 - 30 \mu s$) ist f sehr breit. Für noch kleinere Zeiten kann man praktisch nicht mehr von einer wohldefinierten Tropfenverteilungsfunktion sprechen.

V. Offene Fragen bei der Elektron-Loch-Tropfennukleation

Im Zusammenhang mit der Elektron-Loch-Tropfennukleation bestehen noch einige offene Probleme. Es ist z.B. bisher nicht gelungen, die Auswirkung rascher Änderungen der Exzitonenkonzentration auf das Gesamtsystem der elektronischen Anregungen (Exzitonen und Elektron-Loch-Tropfen) zu behandeln. Silver (Ref. 9) hat ein Kriterium hergeleitet, dessen Erfüllung die Voraussetzung dafür ist, den Strom über die Potentialbarriere $\Psi(n_c, n_x)$ im Rahmen von Gleichgewichtsapproximationen berechnen zu können (vgl. Gl. IV.59 - IV.64). Er konnte zeigen, daß dieses Kriterium z.B. bei sehr schnellen Anstiegszeiten des Lasers ($t_r \rightarrow 0$ in Gl. IV.44) nicht mehr erfüllt ist.

Außerdem sind die erwähnten Gleichgewichtsannahmen auch beim Zerfall von Elektron-Loch-Tropfen nicht gerechtfertigt. Schaltet man den Laser ab, dann sinkt die Exzitonenkonzentration n_x im Vergleich zur Tropfenkonzentration sehr schnell ab, da die Lebensdauer der Exzitonen ($\tau_x \approx 11 \mu s$) in Germanium viel kleiner ist als die der Elektron-Loch-Paare in Tropfen ($\tau_d \approx 41 \mu s$). Es kommt so zu einer Situation, in der zwar Tropfen existieren, aber nur noch sehr wenige freie Exzitonen vorhanden sind. Das System befindet sich im Nichtgleichgewicht und die zeitliche Entwicklung ins Gleichgewicht (keine elektronischen Anregungen im Kristall) kann nicht im Rahmen der bisherigen Näherungen studiert werden. Es sollte aber durchaus möglich sein, diese Situation mit der vollen Fokker-Planckgleichung (Gl. IV.38) zu behandeln, die aus der hydrodynamischen Kontinuitätsgleichung gewonnen wurde.

Ein weiteres Problem besteht aus theoretischer Sicht in der Nichtlinearität der Mastergleichung (Gl. IV.32) (vgl. Diskussion in Kapitel IV.4). Die Exzitonen treten nicht nur als 'Cluster mit einem Elektron-Loch-Paar' auf, sondern sie vermitteln auch noch die Wechselwirkung zwischen Clustern mit n und $n + 1$ bzw. $n - 1$ Elektron-Loch-Paaren. Die Exzitondichte ist kein zeitlich konstanter Parameter, denn wie die Theorie in Übereinstimmung mit dem Experiment deutlich zeigt, sind Exzitondichte, Tropfendichte und Dichte der elektronischen Anregungen in Tropfen Funktionen, deren zeitliche Veränderung stark miteinander gekoppelt ist. Dieses Problem ist charakteristisch für die Tropfennukleation in Systemen mit endlicher Lebensdauer der Teilchen. Bei der klassischen Nukleation hingegen ist es sehr wohl möglich, experimentell die Übersättigung des Dampfes konstant zu halten. Die gebildeten Tropfen können aus dem System entfernt werden, so daß eine Rückkopplung der Tropfenbildung auf die Übersättigung weitgehend vernachlässigbar ist.

Da nun die Mastergleichung für die Elektron-Loch-Tropfennukleation durch einfache Erweiterung der entsprechenden klassischen Gleichung auf Systeme mit endlicher Lebensdauer hergeleitet wurde, hat man im eigentlichen Sinne die Theorie nicht elementar aufgebaut. Die bisher behandelte Mastergleichung stellt schon eine gewisse höhere Approximation dar, die die diskutierten Nichtlinearitäten zur Folge hat.

Ein Ausweg aus dieser Problematik bietet sich mit der Behandlung der Elektron-Loch-Tropfennukleation auf der Ebene der Boltzmann-Gleichung an. Aus der Boltzmann-Gleichung könnte man

verbesserte kinetische Gleichungen erhalten und auch die hydrodynamische Beschreibung erweitern. Die hydrodynamische Approximation der Elektron-Loch-Tropfennukleation ist nämlich, wie bereits diskutiert, durchaus nicht ausgeschöpft. Bisher konnte im Rahmen dieser Behandlung jedoch kein gangbarer Weg gefunden werden, um die Gesamtheit aller Elektron-Loch-Tropfen zu behandeln. Anhand der, durch statistische Fluktuationen erweiterten, hydrodynamischen Gleichungen müßte man jedoch auch Informationen über die Tropfendichte bzw. die Tropfenverteilung im System der elektronischen Anregungen erhalten können.

Die bisher geschilderten Probleme sollen in zukünftigen Arbeiten behandelt werden.

Aus pragmatischer Sicht ist die Kritik der kinetischen Nukleationstheorie eher grundsätzlich, theoretischer Natur. Diese Theorie ist nämlich in der Beschreibung der experimentell gut zugänglichen Phänomene der Elektron-Loch-Tropfennukleation sehr erfolgreich. Wie in der vorliegenden Arbeit angedeutet wurde, können die experimentellen Befunde in reinem Germanium (zum Teil auch in Silizium) gut erklärt werden.

Anders liegt die Situation in direkten Halbleitern, wie z.B. in den II-VI-Verbindungen. In diesen Materialien mit direkter Bandlücke ist die Exzitonen-Lebensdauer sehr kurz. Experimentell können zwar sehr hohe Exzitonendichten erzeugt werden und in einigen Halbleitern wurde auch eine Elektron-Loch-Flüssigkeit beobachtet, Details des Phasenübergangs im System der elektronischen Anregungen konnten bisher jedoch nicht studiert werden. Demzufolge ist die Existenz von Elektron-Loch-Tropfen

in direkten Halbleitern bisher nicht nachgewiesen.

Ob dies allein daran liegt, daß die Tropfen wegen der kurzen Exzitonen-Lebensdauer eventuell sehr klein sind, oder ob hier noch andere Mechanismen eine Rolle spielen, ist bisher ungeklärt. An diesem Problem wird derzeit sowohl experimentell als auch theoretisch noch gearbeitet.

Anhang A.1: Orthogonalitätsrelation für links- und rechts-
händige Eigenvektoren eines nicht selbstadjun-
gierten Matrixoperators

Das Eigenwertproblem für rechtshändige Eigenvektoren $\vec{x}_n$ eines Matrixoperators $\underline{K}$ ist

$$\sum_j K_{ij} x_{nj} = \omega_n x_{ni} \quad , \quad \text{A1.1}$$

wobei n die Eigenmoden indiziert.

Für die linkshändigen Eigenvektoren $\tilde{x}_m$ gilt

$$\sum_i \tilde{x}_{mi} K_{ij} = \omega_m \tilde{x}_{mj} \quad . \quad \text{A1.2}$$

Multipliziert man Gleichung A1.1 von links mit $\tilde{x}_{m,i}$ und summiert über alle i , so gilt

$$\sum_{ij} \tilde{x}_{mi} K_{ij} x_{nj} = \omega_n \sum_i \tilde{x}_{mi} x_{ni} \quad . \quad \text{A1.3}$$

Multiplikation der Gleichung A1.2 von rechts mit $x_{n,j}$ und Summation über alle j liefert

$$\sum_{ij} \tilde{x}_{mi} K_{ij} x_{nj} = \omega_m \sum_j \tilde{x}_{mj} x_{nj} \quad . \quad \text{A1.4}$$

Subtrahiert man nun Gleichung A1.3 und A1.4, so erhält man

$$0 = (\omega_n - \omega_m) \sum_i \tilde{x}_{mi} x_{ni} \quad . \quad \text{A1.5}$$

Für $n = m$ ist der Ausdruck in der Klammer Null, für $n \neq m$ muß gelten

$$\sum_i \tilde{X}_{mi} X_{ni} = 0 \quad . \quad \text{A1.6}$$

Normiert man zusätzlich die Eigenvektoren, so erhält man

$$\tilde{\vec{X}}_m \cdot \vec{X}_n = \delta_{n,m} \quad , \quad \text{A1.7}$$

links- und rechtshändige Eigenvektoren bilden in Bezug auf die Eigenmoden also ein orthogonales System.

Anhang A.2: Materialkonstanten für Germanium

Die folgende Tabelle der Materialparameter für Germanium ist aus Ref. 7 entnommen. Hier findet man auch Angaben über die Originalarbeiten, in denen die einzelnen Parameter bestimmt wurden. (Die Temperaturabhängigkeit einiger Größen wurde durch Anpassung an das Experiment bestimmt.)

Parameter	Symbol	Wert	Einheit
Exzitonenlebensdauer	τ_x	11	μs
Lebensdauer von Elektron-Loch-Paaren in Tropfen	τ_d	41	μs
Koeffizient in der Richardson-Dushman-Verdampfungsrate (Gleichung IV.30)	C	6.11	$10^9 s^{-1} K^{-2}$
Austrittsarbeit aus der Elektron-Loch-Flüssigkeit $\phi = \phi_0 + \alpha T^2$	ϕ_0 α	22.8 0.185	K K^{-1}
Oberflächenspannung eines Tropfens $\sigma = \sigma_0 (1 - T^2/T_c^2)$	σ_0 T_c	3.5 6.5	$10^{-4} \text{ erg cm}^{-2}$ K
Exzitonenmasse durch Masse der freien Elektronen (effektive Massen)	m/m_0	0.335	
Flüssigkeitsdichte in einem Tropfen $n_0 = n_{00} (1 - \delta \cdot T^2)$	n_{00} δ	2.38 0.01	10^{17} cm^{-3} K^{-2}

Anhang A.3: Potential der Sturm-Liouville-Gleichung

Das Potential $V(x)$ (lt. Gl. IV.75), das in der transformierten Sturm-Liouville-Gleichung IV.74 auftritt, ist definiert als

$$V(x) = \frac{1}{F(x)} \frac{\partial^2 F}{\partial x^2} \quad , \quad \text{A3.1}$$

wobei (lt. Gl. IV.72)

$$F(x) = f_0(x)^{1/2} g(x)^{1/4} \quad . \quad \text{A3.2}$$

Die Variablen x und n sind verknüpft über die Beziehung (vgl. Gl. IV.73 und IV.20)

$$x = \int_{n_c}^n d\tilde{n} g_{\tilde{n}}^{-1/2} = \frac{3}{2} (b n_x)^{-1/2} (n^{2/3} - n_c^{2/3}) \quad . \quad \text{A3.3}$$

Diese Gleichung kann nach n aufgelöst werden

$$n = \left[\frac{2}{3} x (b n_x)^{1/2} + n_c^{2/3} \right]^{3/2} \quad \text{A3.4}$$

und die Ableitung $\partial F / \partial x$ läßt sich nach der Kettenregel bilden

$$\frac{\partial F}{\partial x} = \frac{\partial F}{\partial n} \frac{\partial n}{\partial x} \quad . \quad \text{A3.5}$$

Dies erweist sich als günstig, da die natürliche Variable von f_0 und g die Teilchenzahl n ist. Es gilt

$$f_0(n) = \bar{f}_n = \text{const.} \cdot e^{-\psi(n, n_x) / kT} \quad \text{A3.6}$$

mit $\Psi(n, n_x)$ lt. Gleichung IV.27 und

$$g_n = n_x b(T) n^{2/3}$$

Definiert man $\tilde{\Psi} = \Psi/kT$, dann kann man nach Durchführung der Differentiationen das Potential $V(x)$ schreiben als

$$V(x) = -\frac{b n_x}{4} \left[\frac{1}{3 n^{4/3}} - n^{2/3} \left(\frac{\partial \tilde{\Psi}}{\partial n} \right)^2 + \right. \\ \left. + 2 n^{2/3} \frac{\partial^2 \tilde{\Psi}}{\partial n^2} + \frac{4}{3 n^{1/3}} \frac{\partial \tilde{\Psi}}{\partial n} \right], \quad \text{A3.7}$$

wobei

$$\frac{\partial \tilde{\Psi}}{\partial n} = -\ln \frac{n_x}{n_s} + \tilde{\gamma} n^{-1/3} + \ln \left(1 + \frac{n^{1/3}}{a \tau_d} \right)$$

und

$$\frac{\partial^2 \tilde{\Psi}}{\partial n^2} = -\frac{\tilde{\gamma}}{3 n^{4/3}} + \frac{1}{\left(1 + \frac{n^{1/3}}{a \tau_d} \right) 3 a \tau_d n^{2/3}}$$

Hierbei ist

$$\tilde{\gamma} = \frac{2}{3} \left(\frac{6 \sqrt{\pi}}{n_0} \right)^{2/3} \frac{\mathcal{G}}{kT}$$

In Gleichung A3.7 muß jedes auftretende n nach der Vorschrift lt. Gleichung A3.4 durch x ausgedrückt werden.

Das Potential $V(x)$ ist in Figur 20 für $n_x/n_s = 10$ aufgetragen.

Referenzen

- 1) R. Becker and W. Döring, Ann. Phys. (Leipzig) 24, 719 (1935)
- 2) J. Feder, K.C. Russel, J. Lothe and G.M. Pound, Adv. Phys.
15, 111 (1966)
- 3) F.F. Abraham, Homogeneous Nucleation Theory (Academic, New
York, 1974)
- 4) R.N. Silver, Phys. Rev. B17, 3955 (1978)
- 5) H. Haug and S.W. Koch, Phys. Lett. 69A, 445 (1979)
- 6) H. Haken, Synergetics: An Introduction (Springer, New York,
1977)
- 7) J.L. Staehli, phys. stat. sol. (b)75, 451 (1976)
- 8) R.M. Westervelt, phys. stat. sol. (b)74, 727 (1976)
- 9) R.N. Silver, Phys. Rev. B11, 1569 (1975), 12, 5689 (1975)
und 16, 797 (1977)
- 10) M. Combescot, Time Evolution of the Electron Hole Plasma
Nucleation (Vorabdruck 1979)
- 11) V.S. Bagaev et.al., Sov. Phys. JETP 43, 783 (1976)
- 12) Ya.Pokrovskii, phys. stat. sol. (a)11, 385 (1972)
- 13) J.C. Hensel, T.G. Phillips, T.M. Rice, G.A. Thomas, Solid
State Physics 32 (1977)
- 14) S.W. Koch and H. Haug, phys. stat. sol. (b)95, (1979)
- 15) L.D. Landau, E.M. Lifshitz, Lehrbuch der theoretischen
Physik VI, Hydrodynamik (Akademie
Verlag, Berlin 1974)
- 16) R. Kronig and A. Thellung, Physica XVIII, 749 (1952)
- 17) A. Thellung, Physica XIX, 217 (1953)
- 18) B.U. Felderhoff, Physica 48, 541 (1970)
- 19) J.W. Cahn and J.E. Hilliard, J. Chem. Phys. 31, 688 (1959)

- 20) J.S. Langer and L.A. Turski, Phys. Rev. A8, 3230 (1973)
- 21) G. Wentzel, Quantum Theory of Fields (Interscience Publ.,
New York, 1949)
- 22) G. Mahler, Habilitationsschrift, Regensburg 1977
- 23) M. Rösler and R. Zimmermann, phys. stat. sol. (b)67, 525
(1975)
- 24) R.F. Fox, Physics Reports 48, 179 (1978)
- 25) L.D. Landau, E.M. Lifshitz, Lehrbuch der theoretischen
Physik V, Statistische Physik
(Akademie Verlag, Berlin, 1975)
- 26) M. Büttiker and H. Thomas, Solid State Electronics 21, 95
(1978)
- 27) W. Brenig, Statistische Theorie der Wärme (Springer Verlag,
Berlin, 1975)
- 28) A. Ralston and H.S. Wilf, Mathematical Methods for Digital
Computers (Wiley, New York, 1960)
- 29) J.L. Moll, Physics of Semiconductors (Mc. Graw Hill, New
York, 1964)
- 30) R. Graham, Phys. Rev. A10, 1762 (1974)
- 31) H. Haken, Rev. Mod. Phys. 47, 67 (1975)
- 32) R. Graham in: Fluctuations, Instabilities and Phase
Transitions (Herausgeber: Riste,
Plenum Press, New York, 1975)
- 33) H. Haken, Licht und Materie, Handbuch der Physik XXV/2c
(Springer Verlag, Berlin, 1970)
- 34) J.F. Scott, M. Sargent III, C.D. Cantrell, Opt. Commun. 15,
13 (1975)
- 35) H. Haken and H. Ohno, Opt. Commun. 16, 205 (1976) und 26,
117 (1978)

- 36) H. Haken, Z. Physik B21, 105 (1975)
- 37) H.W. Wyld, Mathematical Methods for Physics (Benjamin, London, 1976)
- 38) S.W. Koch, Diplomarbeit (Universität Frankfurt, 1977)
- 39) M. Lax, Rev. Mod. Phys. 32, 25 (1960)
- 40) R. Becker, Theorie der Wärme (Springer Verlag, Berlin, 1966)
- 41) R.M. Westervelt, phys. stat. sol. (b)76, 31 (1976)
- 42) R.M. Westervelt, J.L. Staehli and E.E. Haller, phys. stat. sol. (b)90, 557 (1978)
- 43) R.M. Westervelt, J.C. Culbertson and B.S. Black, Phys. Rev. Lett. 42, 267 (1979)
- 44) J.S. Langer, Ann. Phys. 41, 108 (1967), 54, 258 (1969)
- 45) J.E. Mc Donald, Am. J. Phys. 30, 870 (1962)
- 46) M. Combescot and R. Combescot, Phys. Lett. 56A, 228 (1976)
- 47) H. Haug, Z. Physik 200, 57 (1967)
- 48) H. Haug and S.W Koch in: Proceedings of the Conference on Synergetics, Bielefeld, September 1979 (Herausgeber: H. Haken, Springer Verlag, Berlin) (erscheint voraussichtlich 1980)
- 49) H. Risken and H.D. Vollmer, Z. Physik 201, 323 und 204, 240 (1967)
- 50) H. Brand and A. Schenzle, Phys. Lett. 68A, 427 (1978)
- 51) Courant - Hilbert, Methoden der mathematischen Physik (Springer, New York (1968))
- 52) E. Fick, Einführung in die Grundlagen der Quantentheorie (Akademische Verlagsgesellschaft, Frankfurt (Main) (1974))

53) Abramowitz - Stegun, Handbook of Mathematical Functions

(Dover Publications, New York (1972))

54) A. Sommerfeld, Thermodynamik und Statistik (Verlag H. Deutsch,

Frankfurt (Main) (1977))

Danksagungen

Bei Herrn Prof. Haug möchte ich mich für die Möglichkeit bedanken, die vorliegende Arbeit an seinem Institut anfertigen zu können. Außerdem möchte ich ihm danken für seine ständige Unterstützung und Förderung, für sein Interesse an der Arbeit und für viele nützliche Diskussionen, Hinweise und Ratschläge.

Bei allen Mitgliedern des Instituts für theoretische Festkörperphysik der Universität Frankfurt möchte ich mich für viele anregende Diskussionen bedanken.

Der Deutschen Forschungsgemeinschaft (DFG) danke ich für finanzielle Unterstützung und der GSI, Darmstadt, für die Bereitstellung von Rechenzeit auf ihrer Computeranlage.

Meine akademischen Lehrer waren:

U. Gerhard, H. Haug, L. Hirst, R. Jelitto, W. Martienssen,
E. Mohler und H.G. Schuster

Lebenslauf

23.5.1953	geboren in Frankfurt/M. als erster von vier Söhnen des kaufmännischen Angestellten Fritz Koch und seiner Ehefrau Hilde, geb. Wetzel
1957	Umzug nach Neu Isenburg
Ostern 1959	Einschulung in die Brüder Grimm-Schule, Neu Isenburg
1963	Wechsel in das Goethe-Gymnasium, Neu Isenburg
9.6.1971	Abitur
Oktober 1971	Beginn des Physikstudiums an der J. W. Goethe-Universität, Frankfurt/M.
Juli 1972 - Oktober 1973	Wehr-Ersatzdienst in den Oberräder Werkstätten, Frankfurt/M. - Oberrad
Oktober 1973	Fortsetzung des Physikstudiums
29.4.1974	Diplom - Vorprüfung
11.8.1977	Diplom - Hauptprüfung
1.9.1977	Beginn der Doktorarbeit bei Herrn Prof. Haug, Institut für Theoretische Physik, Universität Frankfurt

Frankfurt am Main, 1979

